

Nichtklassische Lichtemission
aus Punktdefekten
in Multilagen und Monolagen
hexagonalen Bornitrids

Dissertation

zur Erlangung des Grades
des Doktors der Naturwissenschaften
der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät
der Universität des Saarlandes

von

Alexander Erwin Richard Bommer

Saarbrücken

2019

Tag des Kolloquiums: 28.01.2019

Dekan: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Guido Kickelbick

Berichterstatter: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Christoph Becher
Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Roland Bennewitz

Vorsitz: Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Rolf Pelster

Akad. Mitarbeiter: Dr. Christoph Pauly

When all your reason and reference are taken away
And you believe in the perception that something must change
When all your credence and candour are put in their place
You'll find the boldness to abandon the future you face

Don't Look Down
Don't Look Down
Don't Look Down
Don't Look Down

It's time to shine!

(Threshold - Don't Look Down)

Sometimes darkness
can show you the light
(Disturbed - The Light)

Abstract

This work reports on the non-classical emission of light from point-like atomic defects in multilayers and monolayers of hexagonal boron nitride that always exhibits a characteristic spectral fingerprint. By measuring photon statistics as well as the defect's excitation and emission polarisation and by performing low temperature spectroscopy, we show strong and consistent evidence that - contrary to findings in literature - we here do not observe pure single photon sources. Instead, this thesis's results lead to the conclusion that there are at least two electronic transitions present per atomic defect. Nevertheless, with typical count rates between 1-5 million photons per second these new defects belong to the brightest sources of non-classical light ever reported. This renders them interesting for applications in quantum information processing which earlier suffered from poor photon rates. Via coupling this emission to fiber based micro cavities with modal volumes on the order of a few cubic wavelengths, that have also been designed in this thesis, we want to further boost the emission out of defects in hexagonal boron nitride. We were able to incorporate multilayer and monolayer material into these micro cavities. We show that multilayer material leads to large scattering losses and that these losses can be overcome by using monolayer material.

Zusammenfassung

Diese Arbeit behandelt die nichtklassische Lichtemission aus Punktdefekten in Multilagen und Monolagen hexagonalen Bornitrids, der stets ein charakteristischer spektraler Fingerabdruck zu Grunde liegt. Durch die Untersuchung der Photonenstatistik des emittierten Lichtes, der Polarisation der Defekte sowie durch Tieftemperaturspektroskopie liefert die Arbeit konsistente Hinweise, dass es sich bei dieser Emission nicht um, wie in der Literatur berichtet, reine Einzelphotonenemission handelt. Dagegen stellt die Arbeit die These auf, dass stets zwei elektronische Übergänge den Defekten zu Grunde liegen. Nichtsdestotrotz gehören diese neuartigen Defekte mit typischerweise 1-5 Millionen Photonen pro Sekunde zu den hellsten, bislang berichteten Quellen nichtklassischen Lichtes, was sie insbesondere für Anwendungen im Bereich der Quanteninformationsverarbeitung interessant werden lässt, die bislang durch geringe Photonenzählraten limitiert waren. Durch Kopplung der Emission an in der Arbeit konstruierte faserbasierte Mikroresonatoren mit Modenvolumina im Bereich weniger kubischer Wellenlängen war es das Ziel, diese Emission aus hBN zu überhöhen. Kopplungseffekte an solche Mikroresonatoren werden für Multilagen und Monolagen hBN untersucht. Es wird gezeigt, dass Multilagen Material im Resonator zu sehr hohen Streuverlusten führt und dass diese Verluste durch die Verwendung von Monolagen Material umgangen werden können.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	9
2.1	Hexagonales Bornitrid	9
2.1.1	Herstellung, Struktur, Anwendung	9
2.1.2	Phononendispersion	12
2.1.3	Emission aus Punktemittern in hexagonalem Bornitrid	13
2.1.4	Defekte in hexagonalem Bornitrid	14
2.1.5	Defekte für Einzelphotonenemission	17
2.2	Optische Resonatoren	18
2.2.1	Der Fabry-Perot Resonator	19
2.2.2	Gaußsche Strahlen, Wellenfronten	22
2.2.3	Weitere Lösungen der paraxialen Helmholtzgleichung	24
2.2.4	Resonatormoden	24
2.2.5	Moden höherer Ordnung	26
2.3	Resonator Atom Wechselwirkung	28
2.4	Kopplung von Festkörperemittern an Mikroresonatoren	32
2.5	Resonatoren und Kopplungsexperimente	41
2.5.1	Fabry-Perot Mikroresonatoren	41
2.5.2	Kopplung an Fabry-Perot Mikroresonatoren	42
3	Experimentelle Methoden	45
3.1	Konfokalmikroskop	45
3.2	Fasergekoppelter Mikroresonator	47
3.3	Nachweis der Einzelphotonenemission	55
4	Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	65
4.1	Proben und Probenpräparation	66
4.1.1	Multilagen	66
4.1.2	Monolagen	67
4.2	Spektroskopie an Defekten in Multilagen hBN	68
4.2.1	Ursprung der Emission	70
4.2.2	Phononen Seitenbänder	73

4.2.3	Intensitätskorrelationsmessungen	74
4.2.4	Lebensdauermessungen der angeregten Zustände	80
4.2.5	Weitere Involvierte Zeitkonstanten	81
4.2.6	Blinken und Photostabilität	85
4.2.7	Polarisation	88
4.2.8	Tieftemperaturspektroskopie	92
4.2.9	Aktivierung von Emittlern in Multilagen hBN	94
4.3	Spektroskopie an Defekten in Monolagen hBN	103
4.4	Fasergekoppelte Mikroresonatoren	111
4.4.1	Leerer Resonator	111
4.4.2	Multilagen hBN im Resonator	115
4.4.3	Monolagen hBN im Resonator	119
5	Zusammenfassung und Ausblick	123
A	Kryostat	129
B	Intensitätskorrelation	135
C	Emitter in Multilagen Material - Daten	139
D	Publikationen	143

Kapitel 1

Einleitung

Ende des 19. Jahrhunderts brachten Widersprüchlichkeiten zwischen experimentellen Ergebnissen und theoretischen Vorhersagen im Bezug zur sogenannten Schwarzkörperstrahlung die Physik an ihre Grenzen. Die bislang bekannten, und in allen sonstigen Bereichen der Physik erfolgreichen Modelle waren nicht in der Lage, die temperatur- und wellenlängenabhängige Abstrahlung von Körpern zu reproduzieren. Jedoch gelang dem deutschen Physiker Max Planck im Jahr 1900 ein revolutionärer Kunstgriff, der uns heute, beinahe 120 Jahre später, als selbstverständlich erscheint: Energie kann nicht beliebig zerteilt werden, d.h. ein glühender Körper kann Energie nur in wohldefinierten Energiepaketen (Quanten) abgeben [1]. Diese Energiepakete kennen wir heute als *Photonen*, eine Bezeichnung, die sie erst 26 Jahre nach ihrer erstmaligen Einführung erhielten [2]. Es war die Geburtsstunde der modernen Quantenphysik. Max Planck erhielt 1915 den Nobelpreis für Physik und legte die Grundlage für Albert Einsteins Erklärung des photoelektrischen Effekts, für den dieser selbst 1928 mit dem Nobelpreis ausgezeichnet wurde [3]. Bald zweifelte niemand mehr daran, dass es sich bei Plancks Annahme um mehr als nur einen rechnerischen Trick handelte und im Jahr 1927 präsentierte der Brite Paul Dirac gar eine formale Quantisierung der seit 1864 bekannten Maxwellschen Gleichungen [4]. Der Begriff des Photons konnte nun definiert werden als eine *elementare Anregung einer einzelnen Mode des quantisierten elektromagnetischen Feldes*. Es sollten im Anschluss etwa 30 weitere Jahre vergehen, bis die Wissenschaft in der Lage war, die Quantennatur einzelner Lichtteilchen näher zu untersuchen. Ein Hauptgrund hierfür war die technische Limitierung durch Detektoren, die lediglich Intensitäten über längere Zeiträume mitteln konnten und nicht sensitiv auf einzelne Lichtquanten reagierten [5, 6]. Neben einer Weiterentwicklung auf diesem Gebiet wurden darüberhinaus neue Methoden zur Messung der Photonenstatistik elektromagnetischen Lichtes entwickelt [7]. Nehmen wir an, wir schicken einen Zustand bestehend aus nur einem einzigen Photon auf einen Strahlteiler, der Licht zu gleichen Teilen reflektiert und transmittiert, und platzieren Photonendetektoren, die sensitiv auf einzelne Photonen reagieren, sowohl in den vom Strahlteiler reflektierten als auch in den transmittierten Arm. In dieser Konstellation wird es niemals zur gleichen Zeit Koinzidenzen

auf beiden Detektoren geben. Der Ein-Photon-Zustand muss gemäß den Gesetzen der Quantenmechanik auf den einen oder den anderen Detektor kollabieren. Dieses Ausbleiben von Koinzidenzen wird *Antibunching* genannt und kann unter Annahme klassischen Lichtes nicht beschrieben werden. Es ist der unumstößliche Nachweis der Quantennatur des Lichts. Die ersten Nachweise dieses Phänomens erfolgten 1974 an Kaskadenzerfällen in Kalzium-Atomen [8] und 1977 mit Hilfe eines abgeschwächten Strahls aus Natrium-Atomen, bei dem sich im Mittel nur ein Natriumatom im Anregungsfokus des Laserstrahls befand [9]. Bedenkt man an dieser Stelle die Aussage eines der Mitbegründer der modernen Quantentheorie, Erwin Schrödinger im Jahr 1952, dass „wir nie mit nur *einem* Elektron oder Atom experimentieren werden“ [10], wird der rasche Fortschritt dieses neuen Forschungsfelds deutlich. Bis heute wurde die Emission nichtklassischen Lichtes an vielfältigen Systemen demonstriert [11]. Hierzu gehören unter anderem Moleküle [12], Halbleiter-Quantenpunkte [13, 14], in Ionenfallen gefangene einzelne Ionen [15] und lokalisierte Defekte in Festkörpersystemen wie beispielsweise Farbzentren in Diamant [16–20]. Die reine Demonstration dieser Einzelphotonenemission aus all diesen unterschiedlichen Wirtsmaterialien ist vom Standpunkt der Grundlagenforschung hochinteressant. Es stellt sich jedoch die Frage, in welchen möglichen Anwendungsgebieten diese neue Art der Isolation einzelner atomarer Systeme und der nichtklassischen Lichterzeugung genutzt werden kann. Die Antwort auf diese Frage findet man heute unter dem Begriff der *Quanteninformationsverarbeitung* [21–23]. Konkret handelt es sich dabei um die Vision weltweit abhörsicherer Informationsübertragung durch quantenmechanische Lichtzustände und die Entwicklung von Prozessoren und Simulatoren, die auf quantenmechanischen Grundlagen basieren. Knill et al. zeigten im Jahr 2001, dass rein lineare Optik bereits zur effizienten Quanteninformationsverarbeitung mit Photonen ausreicht [24]. Ihr Vorschlag beruht lediglich auf der Verwendung von Einzelphotonenquellen, Strahlteilern, Phasenschiebern, Photo-Detektoren und Feedback der Photo-Detektor-Ausgänge. Das Quantenbit ist realisiert durch ein Photon in zwei optischen Moden (horizontale und vertikale Polarisation) [24–26].

Als weiteres konkretes Beispiel für die mögliche Entwicklung solcher Rechenprozessoren sei darüber hinaus die Demonstration eines CNOT-Gatters mit Hilfe zweier in einer Ionenfalle gefangenen Kalzium-Ionen (*Qubits*) im Jahr 2003 genannt [27, 28]. Damit war experimentell gezeigt, dass sich analog zu Rechenprozessen in klassischen Computern auch mit zwei einzelnen atomaren Systemen logische Verknüpfungen realisieren lassen. Doch welche Rolle kommt einzelnen Photonen in diesen Anwendungen zu? Die Implementierung eines Quanten-Netzwerkes oder gar eines Quanten-Internets [22] erfordert stationäre Quanten-Knoten (stationäre Qubits), in denen Information generiert, gespeichert und weiterverarbeitet wird und einem Quanten-Kanal, der die einzelnen Knoten miteinander verbindet. Als solcher Quanten-Kanal können einzelne Photonen (*fliegende Qubits*) dienen [29–31]. Es ist bislang ungeklärt, welches System (Ionen, Atome, Defekte in Festkörpern...) sich letztlich im Bezug auf tatsächliche Implementierungen durchsetzt.

Mögliche Systeme müssen jedoch eine Reihe von Kriterien erfüllen [32]:

- eine passende Struktur elektronischer Niveaus mit spin-selektiven Übergängen
- lebensdauerlimitierte, homogene Linienverbreiterung eines rein elektronischen Übergangs und niedrige Huang-Rhys-Faktoren
- niedrige inhomogene Verbreiterungen und Vermeidung von spektraler Diffusion um Emission ununterscheidbarer Photonen aus zwei getrennten Emittlern zu ermöglichen
- die Möglichkeit der effizienten Aufsammlung der Emission (für festkörperbasierte Systeme bedeutet dies meist Kopplung an photonische Strukturen).
- elektronische oder nukleare Spin-Zustände mit ausreichend langen Kohärenzzeiten, um eine Anwendug als langlebiges Quantenbit zu ermöglichen

Eine Reihe möglicher Kandidaten finden sich unter den Farbzentren in Diamant, insbesondere Stickstoff-Fehlstelle Zentren (engl. *Nitrogen-Vacancy center* (NV-center)) [19,33]. Bemerkenswerte Experimente sind in den letzten Jahren in den Arbeitsgruppen von Mikhail Lukin und Ronald Hanson an diesem System durchgeführt worden. 2010 ist es Togan et al gelungen, Verschränkung zwischen dem internen Spin eines einzelnen NV-Zentrums und dem Polarisationszustand seiner emittierten Photonen herzustellen [34]. Drei Jahre später waren es Bernien et al, die zwei NV-Zentren, die sich im Abstand von drei Metern in zwei unterschiedlichen Kryostaten befanden, in einem gemeinsamen Verschränkungszustand zu präparieren. Das Protokoll basiert auf einer Verschränkung zwischen den NV-Zentren (Knoten) mit ihren jeweils emittierten Photonen und einer anschließenden gemeinsamen Messung beider Photonen an einem Strahlteiler [35]. Zwei Jahre später erreichten Hensen et al mit zwei Elektronen Spins in 1,3 km entfernten NV-Zentren eine Schlupfloch-freie Verletzung der Bell-Ungleichung [36]. Wie jede experimentelle Realisierung unterliegen auch die drei letztgenannten Experimente Limitierungen. Obwohl in [35] Verschränkung zwischen zwei räumlich getrennten NV-Zentren erreicht werden konnte, ist die Verschränkungsrate mit nur etwa 739 Ereignisse pro 158 Stunden (etwa 1 Ereignis pro 13 Minuten) sehr gering und stellt die Hauptlimitierung dar. Im Falle des NV-Zentrums liegt dies insbesondere daran, dass lediglich Photonen auf dem Null-Phononen-Übergang genutzt werden können, da aufgrund der Phononenwechselwirkung in den Phononen-Seitenbanden die Ununterscheidbarkeit der Photonen nicht gewährleistet ist. Im NV-Zentrum zerfallen jedoch lediglich nur etwa drei Prozent aller Photonen über die Null-Phononen Linie, die darüber hinaus optisch sehr schmalbandig gefiltert werden muss, was weitere Verluste mit sich bringt. Aus dieser Limitierung heraus erwächst die Frage, wie sich die Zahl der verwertbaren Photonen erhöhen lässt. Ein möglicher Ansatz ist die Kopplung der Emission an photonische Strukturen wie Festkörperimmersionslinsen (eng. *Solid Immersion Lens* (SIL)), um Limitierungen der Aufsammeleffizienz der Emission durch Totalreflexion an

der Oberfläche von Bulk-Diamanten zu umgehen [37–41]. Durch die halbrunde Geometrie dieser Anordnung verlassen alle in die entsprechende Richtung abgestrahlten Photonen den Diamanten senkrecht zur Probenoberfläche und es gelangen bis zu einem Faktor 5-10 mehr Photonen in den Detektionsstrahlengang. Kopplung an nanophotonische Strukturen wie Nanordrähte bietet einen Ansatz der gerichteten Abstrahlung der Emissionsdipole in Richtung des Sammelobjektivs und erhöht dadurch ebenso die Aufsammeleffizienz um einen Faktor 5-10 [42–44]. Diese Methoden erlauben beide eine räumliche, jedoch keine spektrale Modifikation der Emission. Im konkreten Fall des NV-Zentrums bedeutet dies, dass immer noch lediglich drei Prozent aller Photonen über den Null-Phononen-Kanal zerfallen. Die Kopplung an Fabry-Perot-Mikroresonatoren mit kleinen Modenvolumina und hoher Güte führt dagegen sowohl zur räumlichen als auch spektralen Modifikation der Emission [45–48]. Kleine Modenvolumina führen zu hohen Kopplungseffizienzen zwischen den Emittern und dem Lichtfeld innerhalb des Resonators. Entgegen der Erwartung führt die Kopplung breitbandiger NV-Zentren an schmalbandige Resonatoren bereits bei Raumtemperatur zu einer Erhöhung der spektralen Emissionsdichte um etwa zwei Größenordnungen [45, 49].

Konkret bedeutet dies, dass in die schmalbandige Resonatormode deutlich mehr Photonen emittiert werden, als dies im freien Raum im gleichen Frequenzintervall der Fall ist. Hauptlimitierung der Kopplung ist zunächst die Linienbreite des Null-Phononen-Übergangs des NV-Zentrums. Nähert sich diese jedoch den Linienbreiten der Resonatoren an, kann der Übergang in ein Purcell-Regime beobachtet werden und das gekoppelte System aus NV-Zentrum und Resonator wird zu einer effizienten Einzelphotonenquelle, deren Linienbreite durch die Linienbreite des Resonators gegeben ist. Im Falle des NV-Zentrums ist die Verringerung der Linienbreite in den Bereich der Linienbreite der Resonatoren gleichbedeutend mit Experimenten bei kryogenen Temperaturen [50, 51]. In der Regel sind Experimente bei kryogenen Temperaturen vergleichsweise aufwendig und unterliegen technischen Herausforderungen. So induzieren Kryostaten Vibrationen im Versuchsaufbau und damit in den verwendeten Mikroresonatoren. Eine weitere technische Herausforderung ist die Justage der Resonatoren in den geschlossenen Probenkammern der Kryostaten. Dies erfordert den Einsatz vieler beweglicher Bauteile, die ihrerseits erneut zu Instabilitäten führen [52, 53].

Wie oben bereits erwähnt, wurde Einzelphotonenemission an vielfältigen atomaren Systemen demonstriert. Es stellt sich die Frage, ob nicht bereits Emittoren zur Verfügung stehen, die auch bei Raumtemperatur verglichen mit dem NV-Zentrum schmale Null-Phononen-Linienbreiten aufweisen. Ein solches System wäre durch Kopplung an Mikroresonatoren in der Lage, in verhältnismäßig einfachen Realisierungen als hocheffiziente Quelle einzelner, schmalbandiger Photonen zu dienen und würde es sogar ermöglichen, bereits bei Raumtemperatur direkt ununterscheidbare Photonen aus dem gekoppelten System zu generieren [54, 55].

Neben den bereits diskutierten Einsatzmöglichkeiten könnte eine solche Quelle ununterscheidbarer Photonen auch für Quantensimulation mit photonischen Schaltkreisen wie beispielsweise im *Boson-Sampling* eingesetzt werden, in dem bewiesen werden soll, dass ein Interferometer bestehend aus rein linearen optischen Komponenten und

Photonenzahl- (Fock-) Zuständen als Eingangszuständen nicht effizient durch klassische Computer simuliert werden kann [56, 57].

Tatsächlich kennen wir beispielsweise mit dem Silizium-Fehlstelle Zentrum (engl. *Silicon-Vacancy center* (SiV)) heute ein weiteres Farbzentrum in Diamant, welches sich im Laufe der letzten drei Jahre als ebenso geeigneter Kandidat für Anwendungen im Bereich der Quanteninformationstechnologien hervorgetan hat [58–62]. Mit einer Emissionsrate in die Null-Phononen Linie von etwa 80% und Lebensdauern des angeregten Zustandes von etwa 1,8 ns ist das SiV-Zentrum in diesen Bereichen dem NV-Zentrum überlegen. Jedoch ist die Herstellung geeigneter SiV-Zentren zur Kopplung an Resonatoren herausfordernd. Insbesondere in Nanodiamanten zeigen SiV-Zentren über die Zeit instabile, mit etwa 10–50 kcts/s verhältnismäßig moderate Zählraten, die auf eine geringe Quanteneffizienz schließen lassen und unter anderem auch Resonatorkopplungsexperimente limitieren [63].

Interessanterweise erschienen etwa zur gleichen Zeit, in der die zuletzt erwähnten Experimente durchgeführt wurden, Berichte über nichtklassische Lichtquellen in kommerziell erhältlichen 2-dimensionalen Materialien wie hexagonalem Bornitrid [64–72] sowie Wolframdiselenid (WSe_2) und Wolframdisulfid (WS_2) [73–78]. Mit Emissionsraten von typischerweise 1–5 Millionen Photonen pro Sekunde bei Lebensdauern der angeregten Zustände von 1–10 ns sind insbesondere die beobachteten Emittoren in hexagonalem Bornitrid in kürzester Zeit in die Klasse der hellsten, jemals berichteten Quellen nichtklassischen Lichtes bei Raumtemperatur aufgestiegen [20, 79]. Diese Emission wird momentan auf atomare Defekte in der Kristallstruktur zurückgeführt, die ähnlich wie Farbzentren in Diamant in der Bandlücke des hBN ($E_g = 5,9 \text{ eV}$) diskrete Energieniveaus ausbilden. Die genaue Beschaffenheit des verantwortlichen Defektes ist jedoch noch Gegenstand aktueller Forschung [64, 80–82]. Natürlich muss sich dieses sehr junge System als Konkurrent zu den oben bereits behandelten Festkörpersystemen noch behaupten. Ein großer Vorteil in möglichen technischen Anwendungen liegt aber bereits darin, dass hBN unter anderem als einatomige Monolage existiert und als solche vergleichsweise einfach zu isolieren ist [83–90]. Dies eröffnet faszinierende Möglichkeiten der Integration in Heterostrukturen und optoelektronische Bauteile [91, 92]. hBN konnte in Heterostrukturen bereits die elektronischen Eigenschaften von Graphen [93–95] modifizieren und zur Demonstration verbesserter Feld-Effekt-Transistoren beitragen [96, 97]. Diese Verbindung der hervorragenden elektrischen Eigenschaften von Graphen und Einzelphotonenemittern in hBN könnte in Zukunft neue Perspektiven in der Konstruktion kompakter, elektrisch getriebener Einzelphotonenquellen eröffnen und auch für Graphen somit neue Anwendungsbereiche eröffnen.

Ziel und experimenteller Umfang der Arbeit

Die neue Klasse von Quantenemittern in hexagonalem Bornitrid stellt das Hauptthema der vorliegenden Arbeit dar. Ziel ist die Kopplung der Emission an Mikroresonatoren zur Realisierung einer effizienten und schmalbandigen Einzelphotonenquelle bei Raumtemperatur. Die verwendeten Mikroresonatoren bestehen aus einem ebenem Spiegel und einem in die Endfacette einer optischen Faser einbeschriebenen Mikrospiegel. Hierbei dient die optische Faser zur Auskopplung des Lichtes aus dem Resonator. In weiterführenden Experimenten soll dies den Vorteil einer kompakten, direkt fasergekoppelten Einzelphotonenquelle bieten. Die experimentellen Aspekte der Arbeit umfassen

1. spektroskopische Untersuchungen an Emittern in einatomigen und mehratomigen Schichten hBN
2. die Produktion der verwendeten Resonatorspiegel, der Aufbau und die Vermessung entsprechender Mikroresonatoren
3. vorläufige Resultate im Bezug auf die Kopplung einzelner Emitter in hBN in einatomigen Monolagen sowie in Multilagen Partikel

Gliederung der Arbeit

Kapitel 2 behandelt alle benötigten Grundlagen der Arbeit. Es gibt einen Überblick über hexagonales Bornitrid im allgemeinen, inklusive der Herstellung und technischer Anwendungen (2.1.1). Die Phononendispersion des hBN (2.1.2), bisherige Resultate im Bezug auf die Einzelphotonenemission (2.1.3), Defekte in der Gitterstruktur im allgemeinen (2.1.4) und in der Literatur vorgeschlagenen Defekte als Grundlage der beobachteten Emission werden diskutiert (2.1.5). Im Anschluss behandelt die Arbeit in Abschnitt 2.2 die Grundlagen der Resonatortheorie von der Beschreibung von Fabry-Perot-Resonatoren (2.2.1) und der Modenstruktur (2.2.2-2.2.5) über die Atom-Resonator-Wechselwirkung (2.3) bis hin zur Kopplung breitbandiger Festkörperemitter an Mikroresonatoren (2.4). NV-Zentren und Defekte in hBN werden als Kandidaten zur Realisierung einer hocheffizienten Einzelphotonenquelle durch Resonatorkopplung gegenübergestellt. Das gesamte Kapitel schließt mit einer Zusammenfassung bisheriger Experimente zur Kopplung festkörperbasierter Einzelphotonenemitter, insbesondere von SiV-Zentren und NV-Zentren an Mikroresonatoren (2.5).

Kapitel 3 beschreibt die experimentellen Methoden der Arbeit. Hierzu gehören neben der Einführung des zur Untersuchung verwendeten konfokalen Mikroskops (3.1) auch die Herstellung der Resonatorspiegel und der Aufbau des fasergekoppelten Resonators (3.2). Ein Hauptaugenmerk der Arbeit liegt auf der Photonenstatistik aus den betrachteten Emittern. Aus diesem Grund behandelt Abschnitt 3.3 im Detail das Vorgehen zur Auswertung diesbezüglicher Messungen.

In **Kapitel 4** werden die experimentellen Ergebnisse der Arbeit präsentiert und diskutiert. Diese beinhalten zunächst die Probenpräparation (4.1) sowie die Untersuchung

von Quantenemittern in Multilagen hBN (4.2) hinsichtlich ihrer charakteristischen spektralen Form (4.2.1,4.2.2), ihrer Photonenstatistik (4.2.3), Lebensdauern der angeregten Zustände (4.2.4), dem Einfluss weiterer elektronischer Zustände auf den elektronischen Zerfall (4.2.5), Blinken und Photostabilität der Emission (4.2.6), Anregungs- und Emissionsdipole (4.2.7) sowie Experimenten bei kryogenen Temperaturen (4.2.8). Abschnitt 4.2.9 behandelt die quantitative Aktivierung von Quantenemittern in Multilagen hBN durch Ausheilen der Probe, Elektronenbestrahlung und erneutes Ausheilen. In folgenden Abschnitt 4.3 erfolgt ein Vergleich der Emission aus Multilagen hBN mit der entsprechenden Fluoreszenz aus Monolagen Flocken. Zum Abschluss behandelt Abschnitt 4.4 Experimente zu den in der Arbeit konstruierten faserbasierten Mikroresonatoren. Zunächst werden die Resonatoren zu Referenzzwecken ohne die Inkorporation des hBN vermessen 4.4.1. In den folgenden Abschnitten wird der Einfluss von sowohl Multilagen Flocken 4.4.2 und Monolagen Flocken 4.4.3 zwischen den Resonatorspiegeln untersucht. **Kapitel 5** fasst die Resultate dieser Arbeit und gibt einen Ausblick, welche weiterführenden Experimente in diesem Zusammenhang ermöglicht werden.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Hexagonales Bornitrid

Dieses Kapitel gibt eine Einführung in hexagonales Bornitrid (hBN), das in dieser Arbeit als Wirtsmaterial für nichtklassische Lichtemission verwendet wird. Wir beginnen in 2.1.1 mit einer kurzen Übersicht über seine Herstellung, die Struktur und die Beschaffenheit seiner Bandlücke. Außerdem werden zwei bereits bestehende Anwendungsgebiete präsentiert, in denen es aufgrund seiner hervorragenden chemischen und elektrischen Eigenschaften eingesetzt wird. Für die Verwendung als Wirtsmaterial für Quantenemitter im sichtbaren Spektralbereich ist insbesondere die Phononendispersion des hBN im Zentrum der Brillouin-Zone interessant. Diesem Thema widmet sich Abschnitt 2.1.2, ehe in 2.1.3 im Laufe der Entstehung dieser Arbeit berichtete Ergebnisse im Bezug auf Einzelphotonenemission aus Defekten in hBN zusammengefasst werden. Die Abschnitte 2.1.4 und 2.1.5 behandeln im Anschluss die Erzeugung und Stabilität von Defekten in hBN und ihre Auswirkungen auf die elektronische Struktur im Allgemeinen und mit direktem Bezug auf die für die Einzelphotonenemission verantwortlichen Defekte.

2.1.1 Herstellung, Struktur, Anwendung

Zum ersten mal wurde Bornitrid im Jahr 1842 in einer Reaktion zwischen einer Borquelle (geschmolzenes BorOxid (B_2O_3)) und einer Stickstoffquelle (Kaliumcyanide (KCN)) hergestellt [98]. Bornitrid ist isostrukturell zu Kohlenstoff, kristallisiert daher in verschiedenen Formen (kubisch, hexagonal, Wurtzit) und ist bekannt für seine hohe thermische Leitfähigkeit, Elastizität und chemische Stabilität. Die kubische Struktur (c-BN) gleicht dem Diamant und ist nach diesem das zweithärteste bekannte Material. Diese Arbeit beschäftigt sich mit der hexagonalen Form (hBN), in der Bornitrid analog zu Graphit kristallisiert [99]. Hier sind die Bor- und Stickstoffatome in jeder Lage in alternierender Reihenfolge angeordnet und durch starke kovalente Bindungen miteinander verbunden. Die einzelnen Lagen werden durch schwache Van-der-Waals Wechselwirkun-

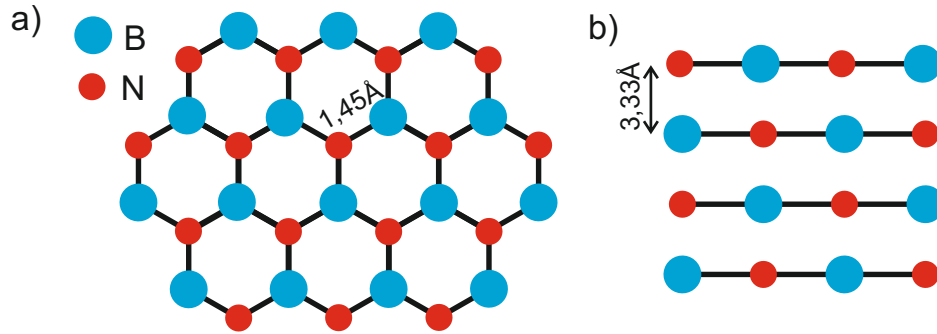


Abbildung 2.1: a) Schematische Darstellung der hexagonalen Gitterstruktur einer Monolage hBN mit Gitterparameter $a=1,45 \text{ \AA}$. b) Mehrere Lagen hexagonalen BorNitrids. Die Gitterkonstante in axialer Richtung beträgt $c=3,33 \text{ \AA}$. Die Schichten sind derart gestapelt, dass sich jeweils ein Bor-Atom über einem Stickstoff-Atom, und umgekehrt, befindet.

gen zusammengehalten (*Van-der-Waals-Kristall*). Die Schichten sind derart angeordnet, dass jeweils ein Stickstoff-Atom über einem Bor-Atom liegt (und umgekehrt). Die Gitterparameter der hexagonalen Struktur betragen $a=1,45 \text{ nm}$ und $c=3,33 \text{ nm}$ (vgl. 2.1). Über die Jahre wurden verschiedene Methoden entwickelt, defektfreies, monolagiges hBN herzustellen. Die meistverwendete Methode ist der Prozess der chemischen Gasphasenabscheidung (CVD), bei dem hBN auf verschiedenen Katalysatorsubstraten wie Kupfer oder Kalium gewachsen wird [83–87]. Aber auch durch mechanische Spaltung, Exfoliation und Elektronenbestrahlung konnte hBN als Monolage produziert werden [88–90].

hBN wird allgemein als *weißes Graphen* bezeichnet. Im Unterschied zu Graphen mit seinen Eigenschaften eines Halbmetalls, ist hBN ein Halbleiter. Die genaue Beschaffenheit der Bandlücke ist in zahlreichen theoretischen und experimentellen Studien untersucht worden, wobei sowohl direkte als auch indirekte Bandlücken im Bereich zwischen 3,9 eV bis 7,1 eV vorgeschlagen wurden [100–103]. Eine ausführliche Übersicht über die hierzu durchgeführten experimentellen Arbeiten findet sich in [102]. Die meisten theoretischen Arbeiten gingen stets von einer indirekten Bandlücke aus, wobei sich deren tatsächliche Größe jeweils aufgrund unterschiedlicher Berechnungsarten unterschieden hat. Im Jahr 2004 wurde es zum ersten mal möglich, unter Verwendung eines Ba-B-N Katalysators in einem HPHT (High Pressure High Temperature) Verfahren einen hBN Kristall ausreichender Reinheit zu züchten, mit Hilfe dessen die Bandlücke des hBNs auf 5,792 eV (214 nm) bestimmt werden konnte und darüberhinaus in Kathodolumineszenzmessungen eine sehr intensive Fluoreszenz im ultravioletten Spektralbereich bei 5,765 eV (215 nm) nachgewiesen werden konnte [104]. Aus Ihren Beobachtungen schlossen die Autoren zusammenfassend, dass es sich bei hBN um einen direkten Halbleiter handelt. Diese Annahme konnte erst im Jahr 2016 durch Zwei-Photonen-Anregung und hochauflösende Spektroskopie widerlegt werden [105]. Hierbei verstimmten die Autoren

den Anregungslaser über einen Bereich größer als die halbe Bandlücke und reduzierten dabei ungewolltes Streulicht, das bei Ein-Photonen-Anregung stets auftritt. Auf diese Weise konnte gezeigt werden, dass hBN eine indirekte Bandlücke von 5,955 eV (208 nm) besitzt und es sich bei den im Spektrum bei niedrigeren Energien (5,76 eV und 5,86 eV) auftretenden Linien um Phononen-Repliken handelt [105]. Beachte, dass diese Resultate nur in hochreinen hBN-Proben gemessen werden können. Normalerweise beobachtet man ein komplexeres Emissionspektrum bestehend aus einer Serie von Emissionslinien zwischen 5,3 eV-5,9 eV, die Defekten und Stapelfehlern in der Probe zugeschrieben werden [106, 107].

Ein Hauptanwendungsgebiet findet hBN in der gemeinsamen Nutzung mit Graphen in Van-der-Waals-Heterostrukturen. Aufgrund der fast perfekten Übereinstimmung ihrer Gitterparameter stellt hBN ein außerordentlich gutes Substrat für Graphen dar. Die Herstellung dieser Heterostrukturen ist auf verschiedenen Wegen gelungen. Dazu gehören unter anderem mechanische Exfoliation [108], direktes CVD Wachstum des Graphen auf hBN [109] und Molekularstrahl-Abscheidung [110]. Von allen bekannten 2-dimensionalen Materialien zeigt Graphen sowohl die höchste mechanische Härte als auch die höchsten elektrischen und thermischen Leitfähigkeiten. hBN ist wie oben beschrieben ein Halbleiter und dadurch limitiert in Anwendungsbereichen wie Festplatten, Kondensatoren oder Gate-Dielektrika in Feld-Effekt-Transistoren (FET) [111, 112]. Geim et al konnten zeigen, dass Wachstum von Graphen auf einem Substrat aus hBN zu kleinen Änderungen in der Kristallstruktur des Graphen führen, was in der Bildung einer Bandlücke in der elektronischen Struktur des Graphens resultiert [96, 97]. Mit dieser Information ist es Wang et al gelungen, unter Verwendung einer Struktur aus BN/-Graphene/BN den ersten Radiofrequenz Feld-Effekt-Transistor (FET) zu demonstrieren. Das Bornitrid diente hierbei sowohl als Substrat, als auch als Gate-Dielektrikum, während eine Schicht aus zwei Lagen Graphen als Tunnel verwendet wurde. Dieses Schichtsystem erlaubt deutlich bessere Mobilität und Ladungsträgergeschwindigkeiten als die normalerweise verwendeten Substrate SiO_2 und Si in Verbindung mit Al_2O_3 als Gate-Dielektrikum [113]. Ein Grund hierfür liegt in der relativ leichten Herstellung ebener hBN Schichten einheitlicher Dicke, die Streu-Effekte in zuvor berichteten FETs unter Verwendung von beispielsweise SiO_2 drastisch reduzieren. Ursache dieser Streuverluste sind vor allem Verunreinigungen auf dem SiO_2 Substrat, die zu Streuung von Ladungen führen oder Ladungsträger einfangen. Dies resultiert stets in signifikanter Unterdrückung der Ladungsträgermobilität des Graphen. Ein weiterer Vorteil hier hBN zu nutzen, ist seine hohe chemische Stabilität, die ungewollte Reaktionen mit benachbarten Schichten behindert. Seine, verglichen mit SiO_2 , etwa zwanzig mal höhere thermische Leitfähigkeit ist in der Lage, Wärme deutlich effizienter von kompakten elektronischen Geräten abzuführen, wodurch sich deren Lebensdauern stark erhöhen. Für ausführliche Reviews siehe [114–116].

Einen ersten Schritt in Richtung Anwendung von hBN als Laser oder LED im ultravioletten Spektralbereich und Implementierung kompakter optoelektronischer Geräte im Ultravioletten gingen im Jahr 2004 Watanabe et al [104]. In Kathodolumineszenzmessungen entdecken sie, dass hochreines hBN intensive Exzitonen Banden nah der

Bandlücke im Bereich zwischen 215 nm-227 nm (5,47 eV-5,75 eV), zeigt, die ausreichend stark sind um stimulierte Emission zu verursachen [117]. Auf Grundlage dieser Emission entwickelten sie daraufhin einen kompakten Prototyp einer im Ultravioletten emittierenden Lichtquelle basierend auf einkristallinem hBN-Puder mit einer stabilen Ausgangsleistung von 0,2 mW bei 220 nm. Die Ausgangsleistung des Gerätes kann auf Kosten der Zuverlässigkeit des Gerätes auf über 1 mW gesteigert werden [118, 119]. In Kombination mit der außerordentlich guten chemischen und thermischen Stabilität des hBN eröffnet dies nicht nur ein neues Gebiet für robuste, tief-ultraviolett emittierende Halbleiter Bauteile sondern auch für solche, die unter extremen Bedingungen wie hohen Temperaturen und hohen Drücken arbeiten. Damit besitzt hBN prinzipiell das Potential, sich in Zukunft als weiterer III-V-Verbindungshalbleiter neben Galliumnitrid als Material zum Bau von Lichtquellen im Ultravioletten zu etablieren [91, 92, 120].

2.1.2 Phononendispersion

Kristallines hexagonales Bornitrid besitzt D_{6h}^4 Raumgruppensymmetrie und die Symmetrie Transformationen der optischen Phononen am Γ -Punkt sind gegeben durch

$$\Gamma = 2E_{2g} + 2B_{1B} + A_{2u} + E_{1u}. \quad (2.1)$$

Hiervon sind die beiden E_{2g} Moden Raman aktiv, A_{2u} und E_{1u} sind infrarot aktiv und B_{1g} ist optisch inaktiv [121]. Tabelle 2.1 fasst die entsprechenden Phononenenergien dieser Schwingungen zusammen. Die experimentellen Werte sind zusammengetragen aus der Literatur [121–124].

Symmetry	k [cm ⁻¹]	E [meV]
E_{2g}	1362,8 / 1365,2 / 1369,3	169,1 / 169,4 / 169,9
E_{2g}	51,8	6,4
A_{2u}	782,5	97,1
E_{1u} (LO)	1608,6	199,6
E_{1u} (TO)	1366	169,5
B_{1g} (ZO)	–	–
B_{1g} (ZA)	–	–

Tabelle 2.1: Experimentelle Phononen Energien in meV und als Wellenzahl am Γ -Punkt in hBN. Beachte: Die 3 Werte für die Mode mit Symmetrie E_{2g} sind entnommen aus mehreren Veröffentlichungen [121–124]. Die genaue Verschiebung ist unter anderem abhängig von der Anzahl der Atomlagen des verwendeten Materials [123, 125, 126] (Siehe Text)

Der große Unterschied in der Frequenz der beiden zweifach entarteten Moden mit E_{2g} -Symmetrie ist eine Folge der großen Anisotropie in der starken kovalenten Bindung der Atome in einer Ebene verglichen mit der schwachen Van der Waals-Bindung der

einzelnen Ebenen untereinander. Die Mode bei $51,8\text{ cm}^{-1}$ hat ihre Ursache in einer Verschiebung ganzer Ebenen relativ zueinander. Die Mode bei $1366,2\text{ cm}^{-1}$ wird erzeugt durch die Verschiebungen von Bor und Stickstoff Atomen in einer Ebene [123]. Bei etwa 165 meV liegt darüberhinaus auch ein Maximum in der Phononenzustandsdichte des hBN.

Tatsächlich ist der genaue Wert der Ramanverschiebung abhängig von der Anzahl der Atomlagen des hBN. Die Anzahl Lagen des untersuchten Bornitrids lässt sich anhand der Lage der Ramanlinie und deren Breite bestimmen [123, 125, 126]. Im Vergleich zum Bulk hBN ist die Ramanlinie in Monolagen typischerweise zwischen 2 cm^{-1} und 4 cm^{-1} zu höheren Wellenzahlen verschoben. Diese Verschiebung variiert jedoch von Probe zu Probe. Theoretische Vorhersagen gehen von einer Verschiebung um 4 cm^{-1} aus [127]. Bi-Lagen hBN zeigen typischerweise eine Rotverschiebung der Ramanlinie, jedoch mit einer relativ großen Verteilung der Zentralpositionen. Im Falle mehrerer Lagen (3-12) bleibt die Position der Ramanlinie konstant, jedoch im Vergleich zum Bulk-hBN stets leicht rotverschoben. Sie beobachten darüberhinaus, dass die Intensität der Ramanlinie linear mit der Anzahl der Lagen steigt. Auf diese Weise kann mit Hilfe eines geeignet kalibrierten Ramanspektrometers die Anzahl der Lagen in den Proben auf einfache Weise bestimmt werden.

Die beiden infrarotaktiven Moden A_{2u} und E_{1u} liegen bei $782,5\text{ cm}^{-1}$ ($97,1\text{ meV}$) und $1608,6\text{ cm}^{-1}$ ($199,6\text{ meV}$). Das Kristallfeld hebt im Unterschied zu den beiden jeweils zweifach entarteten E_{2g} -Moden die Entartung der E_{1u} -Mode auf und erzeugt eine Aufspaltung dieser longitudinalen (LO) und transversalen optischen (TO) Phononen [124].

2.1.3 Emission aus Punktemittern in hexagonalem Bornitrid

Als zwei-dimensionales Material besitzt hBN eine mit ca $5,9\text{ eV}$ bemerkenswert große Bandlücke. In Analogie zu Farbzentren in Diamant dient diese Bandlücke als Wirtskörper für Grund- und angeregte Zustände optisch aktiver Punktdefekte. Sowohl aus Defekten in Monolagen als auch in Multilagen hBN konnte bislang nichtklassische Lichtemission demonstriert werden [64–72]. Mit Emissionsraten von typischerweise 1-5 Millionen Photonen pro Sekunde gehören diese Emittter zu den hellsten, bislang bekannten Einzelphotonenemittern in Festkörpersystemen [20, 79]. Die Lebensdauer des angeregten Zustands variiert zwischen 1-10 ns und liegt somit im Bereich der Lebensdauern von SiV-Zentren in Nanodiamant. Die Emission der Defekte erfolgt in eine asymmetrische Null-Phononen-Linie mit zwei angrenzenden Phononenseitenbändern. Die Asymmetrie der Null-Phononen-Linie wird in der Literatur auf eine Wechselwirkung des Defektes mit Phononen zurückgeführt [64]. Man beachte Bemerkenswerterweise streut die Position der Null-Phononen-Linie vermutlich aufgrund von Verspannungen im Kristallgitter über einen Bereich von etwa 200 nm (ca. $560\text{--}760\text{ nm}$). Bourellier et al finden Einzelphotonenemission sogar im Ultravioletten bei etwa 300 nm [128]. Der energetische Abstand zwischen Null-Phononen-Linie und den zugehörigen Phononenseitenbändern bleibt jedoch konstant und liegt bei $160 \pm 5\text{ meV}$ [65, 67]. Dies wird in der Literatur als starker Hinweis darauf angesehen, dass die Phononenmoden, an die der Defekt koppelt, für alle

Defekte gleich sind und alle untersuchten Defekte ähnliche kristallographische Strukturen besitzen [65].

Spektroskopische Untersuchungen bei kryogenen Temperaturen zeigten, dass die Null-Phononen-Linie für tiefe Temperaturen ein gaußförmiges Profil annimmt. Dies deutet daraufhin, dass der Übergang bei tiefen Temperaturen durch temperaturunabhängige spektrale Diffusion verbreitert wird und für steigende Temperaturen eine temperaturabhängige Phononenverbreiterung dominiert [20, 129–131]. Gemessen wurde eine konstante Linienverbreiterung durch spektrale Diffusion von 21,3 GHz im Temperaturbereich zwischen 5–20 K, wohingegen die natürliche Linienbreite bestimmt durch Lebensdaueremission des angeregten Zustandes lediglich 32 MHz beträgt [132]. Für steigende Temperaturen bis 300 K wurde darüber hinaus ein $T^{2,94}$ Gesetz zwischen Temperatur und Linienbreite gefunden, welches in guter Übereinstimmung mit früheren Messungen an anderen Defekten in Festkörpersystemen liegt [133, 134].

Ein wichtiger Aspekt in der Nutzung von Einzelphotonenemittern in Festkörpersystemen ist die Kontrolle über die Emissionswellenlänge. In dieser Hinsicht konnte bereits mittels einer Heterostruktur aus Graphen und hBN die Kontrolle der Emissionswellenlänge eines Einzelphotonenemitters in hBN elektrisch durch den Stark-Effekt demonstriert werden [135]. Darüberhinaus ist nicht-lineare Anregung einzelner Emitter in hBN durch zwei Photonen Absorption möglich [68]. Dies ist ein wichtiger Prozess in Molekül-Spektroskopie und biologischer Mikroskopie, da durch die geringere Anregungsfrequenz Untergrundfluoreszenz in den umgebenden Medien deutlich reduziert werden [136]. Ein Vergleich zwischen direkter Anregung und Zwei-Photonen-Anregung zeigte einen starken Unterschied in den jeweiligen Sättigungszählraten und Sättigungsleistungen. Da unterschiedliche Konfigurationen des experimentellen Aufbaus lediglich zu unterschiedlichen Sättigungsleistungen führen würden, folgern die Autoren, dass diese Emitter zusätzliche Zustände aufweisen, die durch die unterschiedlichen Anregungsmethoden unterschiedlich besetzt werden.

2.1.4 Defekte in hexagonalem Bornitrid

Defekte in Kristallstrukturen spielen im Allgemeinen eine Schlüsselrolle in der Bestimmung von Materialeigenschaften von Nanomaterialien. Auch die Ursache der nicht-klassischen Lichtemission aus hBN wird in Analogie zu Farbzentren in Diamant auf Punktdefekte in der kristallographischen Struktur des h-BN Gitters zurückgeführt, die in der Bandlücke diskrete Energieniveaus ausbilden. Bis heute ist die experimentelle und theoretische Untersuchung möglicher Punktdefekte und ihre Auswirkungen auf die elektronische Struktur des hBN Gegenstand der Forschung. An dieser Stelle sollen einige Beispiele theoretischer Berechnungen der Auswirkung solcher Defekte auf die elektronische Struktur des hBN vorgestellt werden. In der Vergangenheit war die Unkenntnis über die genaue Beschaffenheit der Bandlücke ein großes Problem, etwaige neue Zustände und Energieniveaus innerhalb der Bandlücke in Simulationen zu identifizieren.

Bereits 1975 untersuchten Zunger et al., dass Defekte im hBN Gitter zur Ausbildung neuer Energieniveaus in der Bandlücke führen [137]. Die Autoren ersetzten hierbei ein Stickstoff-Atom durch ein Kohlenstoff-Atom und erzeugten im Nachhinein eine Stickstoff Fehlstelle durch Herauslösen dieses Kohlenstoff Atoms aus dem Atomverbund. Sie fanden, dass das Kohlenstoff Fehlatom zur Bildung zweier neuer Energieniveaus im Abstand von 3,2-4,9 eV unterhalb des Leitungsbandes führt. Herausbewegen des Kohlenstoff-Atoms aus der Ebene führt zur Bildung eines weiteren Niveaus etwa 1,0-1,3 eV unterhalb des Leitungsbandes. Wird dieses Kohlenstoff-Atom unendlich weit aus der Ebene entfernt führt dies zu einem Defektniveau, das bei 1,1-1,4 eV unterhalb des Leitungsbandes liegt.

1996 untersuchten Jimenez et al. die Bindungen und die Entstehung von Punktdefekten in dünnen Filmen hexagonalen Bornitrids unter der Bestrahlung mit N_2^+ Ionen [138]. Unter dieser Bedingung beobachteten sie hauptsächlich die Entstehung von Stickstoff Fehlstellen V_N und Zwischengitterplätzen N_i und B_i . Darüberhinaus wurden B-B Bindungen sichtbar, die Bor Zwischengitterplätzen zugeschrieben wurden. Auf Grundlage dieser Arbeit untersuchten Orellana et al. unter Verwendung von Dichtefunktionaltheorie im Jahr 2001 [139] im Detail sowohl Formationsenergien von Fehlstellen V_N und V_B sowie von Zwischengitterplätzen N_i und B_i in stickstoffreicher Umgebung. Sie fanden, dass die Zwischengitterplätze N_i und B_i relativ geringe Formationsenergien, vergleichbar mit denen der Fehlstellen V_N und V_B besitzen. Außerdem berechneten sie die Energieniveaus, die diese Defekte in der Bandlücke erzeugen. Für die neutralen Defekte sind ihre Ergebnisse in Abbildung 2.2 zusammengefasst.

- a) V_N^0 erzeugt zwei Singlett-Zustände im Abstand von 0,1 eV (voll besetzt) und 3,86 eV (halb besetzt) von der Valenzbandkante.
- b) V_B^0 erzeugt einen einen voll besetzten Singlett-Zustand bei 0,31 eV und einen einfach besetzten, entarteten Dublett bei 1,29 eV.
- c) N_i^0 erzeugt zwei fast entartete, dreifach besetzte Dubletts bei 0,54 eV und 0,55 eV.
- d) B_i^0 erzeugt 3 Singlett Niveaus bei 1,03 eV (voll besetzt), 2,64 eV (halb besetzt) und 2,98 eV (nicht besetzt).

Azevedo et al. erweiterten die Überlegungen und betrachteten die Stabilität und Formationsenergien von N_B , B_N , C_N , C_B , V_B und V_N (s. Abb. 2.3) [140]. Dabei unterschieden sie ebenso zwischen stickstoffhaltigen und borhaltigen Umgebungen. Sie fanden, dass in einer N-reichen Umgebung der Defekt C_B die geringste Formationsenergie aufweist. Dagegen ist C_N in B-reicher Umgebung der stabilste Defekt. Darüberhinaus sind in N-haltiger Umgebung die Defekte C_B und B_N und umgekehrt in B-haltiger Umgebung die Defekte C_N und N_B wahrscheinlicher als die Fehlstellen V_N und V_B in beiden Wachstumsbedingungen.

In den bislang besprochenen Untersuchungen wurden Defekte stets während des Wachstums unter Ionenbestrahlung in das hBN eingebracht. Eine weitere Möglichkeit, Defekte

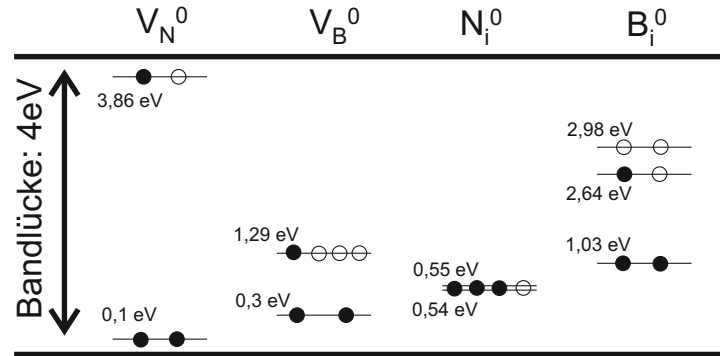


Abbildung 2.2: Durch Orellana et al. berechnete Energieniveaus, die durch die angegebenen neutral geladenen Defekte in der Bandlücke in stickstoffreicher Umgebung induziert werden. Ausgefüllte Kreise bedeuten besetzte Zustände, leere Kreise sind Löcher (Bild nachgestellt aus [139]).

auch nachträglich zu erzeugen, liegt in der Bestrahlung des ausgewachsenen hBN mit hochenergetischen Elektronen. In einem Versuch, Monolagen von hBN durch Elektronenbestrahlung herzustellen, fanden Jin et al, dass durch den Elektronenstrahl mit einer Energie von 120 keV Fehlstellen der Form V_B , V_{2B+3N} , V_{3B+6N} ... entstehen [141]. Frühere Simulationen ergaben, dass die Energie, die benötigt wird, um Bor mit Hilfe von Elektronen aus dem Atomverbund zu lösen, bei 74 keV liegt, für Stickstoff bei 84 keV [142]. Die Energie des verwendeten Elektronenstrahls sollte demnach ausreichen, um beide Arten von Defekten zu erzeugen. Dies wurde jedoch nicht beobachtet. Die Autoren erklären die Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment zum Teil damit, dass die Berechnungen von einem System im thermodynamischen Gleichgewicht ausgingen, wohingegen diese Bedingung im Experiment durch die Elektronenbestrahlung nicht erfüllt ist. Insbesondere wurden im Experiment auch keine Doppelfehlstellen der Art V_{BN} gefunden.

Neben der Bestrahlung durch Elektronen haben Lehtinen et al. in einer ausführlichen Studie die Generierung von Defekten in Monolagen hexagonalen Bornitrids unter Ionen Bestrahlung untersucht [143]. Hierbei variierten sie sowohl die Energie der Ionen zwischen 35 eV und 10 MeV als auch den Einfallswinkel der Ionen auf das hBN. Als Ionenquelle nutzen sie Helium, Neon, Argon, Krypton und Xenon. Sie gliederten die Defekte in vier Kategorien: Einzelne Fehlstellen, Doppelfehlstellen, Komplexe Fehlstellen und Amorphisierung (modifizierte Morphologie ohne fehlende Atome). Für bis zu 100 keV und Bestrahlung senkrecht zur Oberfläche fanden sie hauptsächlich einzelne Bor und einzelne Stickstoff Fehlstellen. Für höhere Beschleunigungsspannungen dominieren komplexere Fehlstellen, wie intuitiv zu erwarten ist. Für Beschleunigungsspannungen im MeV Bereich wird die Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung von Defekten jedoch wieder geringer. Doppelfehlstellen treten bei senkrechtem Einfall im Energiebereich zwischen 0,1-1,0 keV auf. Für größere Einstrahlwinkel beobachteten sie eine Umkehrung des

Verhältnisses zwischen lokalisierten und komplexeren Defekten. Amorphisierung wurde im gesamten Parameterbereich nicht beobachtet.

2.1.5 Defekte für Einzelphotonenemission

Ungeklärt ist bislang der für die berichtete Einzelphotonenemission verantwortliche Defekt in der Gitterstruktur. Auf Grundlage vorheriger Berechnungen und Messungen schließen Tran et al. einzelne Bor-Fehlstellen als Ursache aus, da diese im ultravioletten Spektralbereich emittieren sollte [144], was ihrer Beobachtung der Emissionslinie bei etwa 620 nm widerspricht. Außerdem exkludierten sie Doppelfehlstellen, da diese von Jin et al. nicht beobachtet wurden [141]. In Dichtefunktionalrechnungen ziehen sie eine Stickstoff-Fehlstelle (V_N) und einen Komplex aus einer Stickstoff-Fehlstelle und einem an die Fehlstelle angrenzenden substitutionellen Stickstoff Atom anstelle eines Bor-Atoms in Betracht ($N_B V_N$) (siehe Abbildung 2.3).

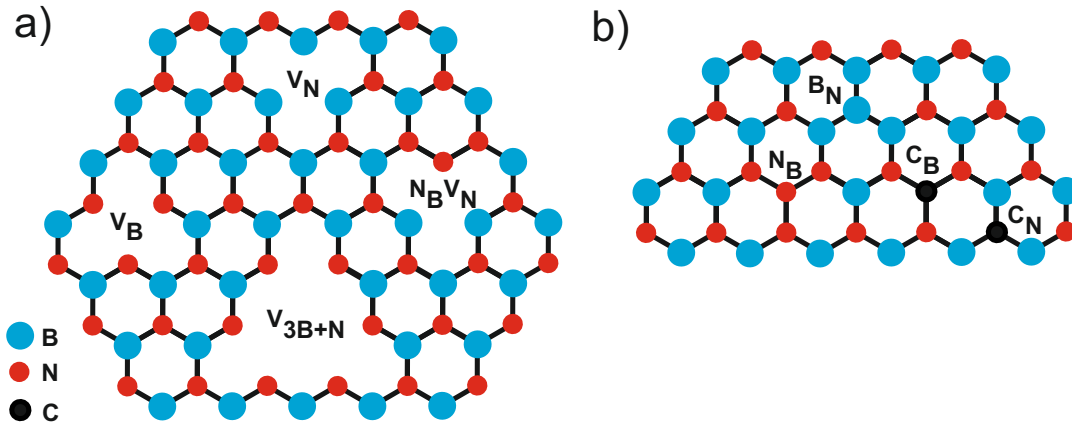


Abbildung 2.3: Defekte in einer Monolage hexagonalen Bor Nitrids. V_B , V_N bezeichnen Bor- bzw. Stickstoff-Fehlstellen. Sie weisen stets umgekehrte Orientierung auf. $N_B V_N$ besteht aus einer Stickstoff-Fehlstelle und einem substitutionellem Stickstoff-Atom an einem Bor-Gitterplatz. Dies ist der für die Einzelphotonenemission vorgeschlagene Defekt.

Beide Defekte würden in der Bandlücke spinerhaltende Übergänge mit Übergangsenergien von 1,97 eV erzeugen. Dies liegt in Übereinstimmung mit den von ihnen beobachteten Übergängen bei etwa 620 nm. Weiterführende Untersuchungen zeigten jedoch eine Verteilung der Null-Phononen Linie über einen Wellenlängenbereich von etwa 200 nm zwischen 550 nm bis 750 nm. Aus diesem Grund weiteten Tawfik et al die Suche nach möglichen Defekten aus und nutzten Grundzustands DFT Simulationen um die elektronische Struktur von 35 verschiedenen Defekten in hBN zu ermitteln [80]. Aufgrund zahlreicher experimenteller Untersuchungen legten sie dabei drei Kriterien fest, die mögliche Kandidaten erfüllen müssen:

1. Die Stabilität der Emitter gegen Ausheilen bei hohen Temperaturen ist ein Anzeichen dafür, dass die Defektlevel in der Bandlücke des hBN liegen und nicht in oder nahe der Bulk-Bänder [64, 70, 145].
2. Die Literatur berichtet lineare Polarisation der Emitter, weswegen auch nur solche Defekte in Betracht gezogen werden, in denen die Defekt-Anregung im optischen Spektrum ebenfalls polarisiert ist [64, 69].
3. Die Zentralwellenlänge der Null-Phononen Linie liegt zwischen 1,3 eV und 2,0 eV [65].

Zur weiteren Eingrenzung der Defekte dient der Huang-Rhys-Faktor. Dieser quantifiziert die Elektron-Phonon Kopplung und gibt Aufschluss über die Intensität der Phononen Seitenbänder relativ zur Intensität der Null-Phononen Linie.

$$S = -\ln \left(\frac{I_{\text{zpl}}}{I_{\text{tot}}} \right) \quad (2.2)$$

Hier sind I_{zpl} die Fläche unterhalb der Null-Phononen Linie und I_{tot} die Gesamtfläche unter dem Spektrum. Zur mathematischen Herleitung dieses Parameters sei auf die Literatur verwiesen [146]. Tawfik et al finden, dass der Kohlenstoff bezogene Defekt $\text{C}_\text{B}\text{V}_\text{N}$, in dem ein Kohlenstoff Atom ein Bor-Atom ersetzt und ein benachbartes Stickstoff Atom fehlt, mit einem Huang-Rhys-Faktor von 1,66 experimentell gemessene Daten am besten reproduziert. Die Annahme eines Kohlenstoff basierten Defektes wird darüberhinaus dadurch gestützt, als dass Kohlenstoff Atome bereits während des Wachstums in das hBN Gitter eindringen [147, 148].

In Kapitel 4 werden wir im Rahmen der Diskussion der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit erneut auf diese theoretischen Vorarbeiten und die Einordnung der Defekte eingehen.

2.2 Optische Resonatoren

Dieser Abschnitt widmet sich der Beschreibung optischer Resonatoren. Für den Fall eines Resonators bestehend aus zwei plan-parallelen Spiegeln (Fabry -Perot-Resonator) werden wir die wichtigsten Kenngrößen eines Resonators herleiten. Wir werden sehen, dass die Wahl zweier ebener Spiegel für die experimentelle Realisierung eines optischen Resonators eine experimentelle Herausforderung darstellt und wie sich dies durch die Nutzung eines gekrümmten Spiegels umgehen lässt. Im Detail behandeln wir den Fall eines ebenen und eines konkav gekrümmten Spiegels. Der Abschnitt orientiert sich an dem Lehrbuch von Saleh und Teich [149].

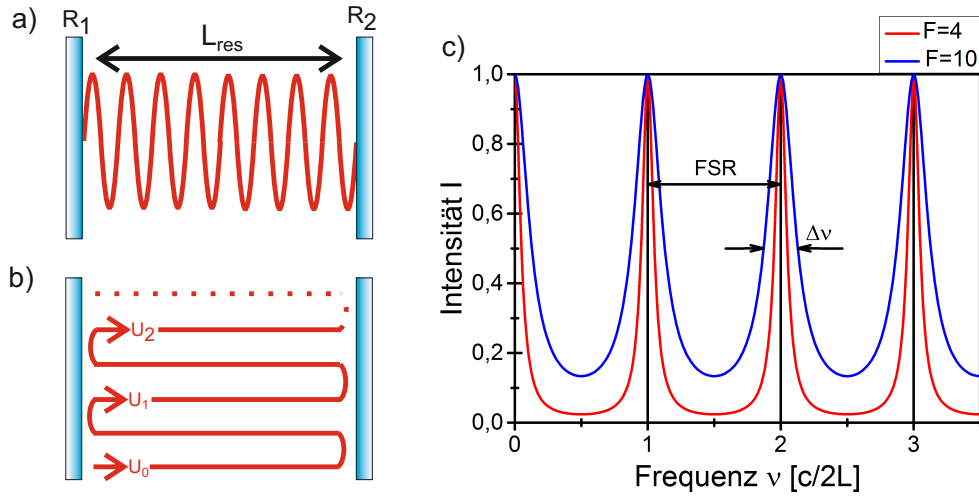


Abbildung 2.4: a) Planparalleler Resonator mit Spiegelabstand L_{Res} und Spiegelreflektivitäten R_1 und R_2 . Die Mode wird als stehende Welle im Resonator beschrieben. b) Äquivalente Situation wie in a). Die Resonatormode wird beschrieben, indem man einer sich im Resonator ausbreitenden Welle folgt. Eine Mode ist eine solche Welle, die sich nach einem Umlauf selbst reproduziert. Die aufgenommene Phase muss in diesem Fall ein ganzzahliges Vielfaches von 2π sein. Dies führt unmittelbar zur Resonanzbedingung. c) Intensität von Resonatormoden in Abhängigkeit der eingestrahnten Frequenz bei konstantem Spiegelabstand L_{Res} für unterschiedliche Finesse \mathcal{F} des Resonators. Die Intensität ist maximal für solche Frequenzen, die der Resonanzbedingung genügen. Die Halbwertsbreite der Moden ist gegeben durch $\Delta\nu = \text{FSR}/\mathcal{F}$

2.2.1 Der Fabry-Perot Resonator

Zur Untersuchung der Modenstruktur eines optischen Resonators beginnen wir mit dem Fall einer Welle mit Wellenlänge λ zwischen zwei idealen, vollständig verlustfreien Spiegeln ($R_1=R_2=1$) im Abstand L_{Res} (Abbildung 2.4a). Um das Licht zwischen den beiden Spiegeln einzuschließen und eine stehende Welle zu generieren muss die Amplitude der Welle auf beiden Spiegeln verschwinden. Diese *Resonanzbedingung* ist erfüllt, wenn der Spiegelabstand L_{Res} ein ganzzahliges Vielfaches n (Modennummer) der halben Wellenlänge λ beträgt:

$$L_{\text{Res}} = n \cdot \frac{\lambda}{2}, \quad n \in \mathcal{N} \quad (2.3)$$

Bei festem Spiegelabstand L_{Res} beträgt der Abstand zweier benachbarter Resonanzfrequenzen demnach

$$\Delta\nu = \nu_{n+1} - \nu_n = \frac{c}{2 \cdot L_{\text{Res}}}. \quad (2.4)$$

Dieser Abstand wird als *Freier Spektralbereich* (*FSR*) bezeichnet.

Alternativ kann eine Mode des Resonators auch als eine sich ausbreitende Welle betrachtet werden, die sich nach einem Umlauf zwischen den beiden Spiegeln selbst reproduziert (Abbildung B.1b)). Um diese konstruktive Interferenz zu gewährleisten, muss die aufgesammelte Phase $\phi = k \cdot 2L_{\text{Res}}$ ein ganzzahliges Vielfaches von 2π betragen:

$$\phi = k \cdot 2L_{\text{Res}} = n \cdot 2\pi \quad (2.5)$$

Dies ist äquivalent zur Resonanzbedingung in Gleichung 2.3.

Binden wir endliche Transmissionen ($R_1, R_2 < 1$) in das Modell ein, so wird die Amplitude U_i der Welle nach jedem Umlauf abnehmen. Dieser Verlust wird mit einem Faktor $h = |r|e^{i\phi}$ modelliert. Ist U_0 die Amplitude der Welle zu Beginn, ergibt sich für die Gesamtamplitude

$$U = U_0 + U_1 + U_2 + \dots = U_0 \cdot (1 + h + h^2 + \dots) = \frac{U_0}{h - 1} \quad (2.6)$$

Hierbei wurde im letzten Schritt die Konvergenz der geometrischen Reihe ($h < 1$) verwendet. Es folgt für die Intensität

$$I = |U|^2 = \frac{|U_0|^2}{|1 - |r|e^{-i\phi}|^2} = \frac{I_{\text{max}}}{1 + \left(\frac{2\mathcal{F}}{\pi}\right)^2 \cdot \sin^2\left(\frac{\pi\nu}{\Delta\nu}\right)}. \quad (2.7)$$

Mit

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{|r|}}{1 - |r|} \quad \text{und} \quad I_{\text{max}} = \frac{I_0}{(1 - |r|)^2}. \quad (2.8)$$

I_0 bezeichnet die Intensität zu Beginn des ersten Umlaufes und \mathcal{F} wird als *Finesse* bezeichnet. Für den Amplitudenfaktor gilt:

$$r = \sqrt{R_1 \cdot R_2} = \sqrt{(1 - T_1) \cdot (1 - T_2)} \quad (2.9)$$

und damit für die Finesse:

$$\mathcal{F} = \frac{\pi(R_1 \cdot R_2)^{1/4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} = \frac{\pi((1 - T_1) \cdot (1 - T_2))^{1/4}}{1 - \sqrt{(1 - T_1) \cdot (1 - T_2)}} \quad (2.10)$$

In einem realen Resonator existieren neben den endlichen Reflektivitäten der Spiegel weitere Verlustkanäle (Absorptionsverluste, Streuverluste). Nennen wir diese Verluste L_1 und L_2 , ergibt sich für den Amplitudenfaktor

$$r = \sqrt{(1 - (T_1 + L_1)) \cdot (1 - (T_2 + L_2))}. \quad (2.11)$$

Für den Grenzfall sehr hoher Reflektivitäten ($R_1, R_2 \approx 1$) ergibt sich die Finesse dann in guter Näherung zu

$$\mathcal{F} = \frac{2\pi}{T_1 + L_1 + T_2 + L_2} \quad (2.12)$$

Abbildung B.1c) zeigt die Intensität der Resonatormoden bei konstantem Spiegelabstand L_{Res} für Resonatoren unterschiedlicher Finesse (Rot: $\mathcal{F} = 4$, Blau: $\mathcal{F} = 10$). Die Intensität der Mode wird maximal bei den Frequenzen, die der Resonanzbedingung 2.3 genügen. Der Modenabstand ist wie im verlustfreien Fall gegeben durch den Freien Spektralbereich FSR und genügt der gleichen Beziehung. Im Unterschied zum idealen Fall weisen die Resonatormoden nun jedoch eine endliche Halbwertsbreite $\Delta\nu$ in Abhängigkeit der Finesse (und damit der Verluste) des Resonators auf. Es gilt

$$\mathcal{F} = \frac{FSR}{\Delta\nu} \quad (2.13)$$

Quantitative Resonatorexperimente erfordern unbedingt Kenntnis über die Größe aller auftretenden Streu- und Absorptionsverluste. Eine elegante Möglichkeiten der gleichzeitigen Messung der Transmission durch den Resonator und aller auftretenden Verluste wurde 2001 von Hood et al vorgeschlagen [150]. Für die Gesamttransmission durch den Resonator gilt:

$$T_{\text{max}}^{\text{theo}} = \frac{4T_1T_2}{(T_1 + L_1 + T_2 + L_2)^2} = 4T_1T_2 \left(\frac{\mathcal{F}}{2\pi} \right)^2. \quad (2.14)$$

Diese Beziehung geht von einem idealen Modenüberlapp ϵ_1 zwischen der Resonatormode und der Mode des eingestrahnten Lichtfeldes aus. Im Experiment ist lediglich der Anteil ϵP_{in} des eingestrahnten Lichtes zur Kopplung an die TEM00 Mode des Resonators geeignet. Der Anteil $(1 - \epsilon)P_{\text{in}}$ geht verloren. Auf Resonanz gilt für das vom Einkoppelspiegel zurückreflektierte Signal:

$$\frac{P_{\text{refl}} - (1 - \epsilon)P_{\text{in}}}{\epsilon P_{\text{in}}} = \left(\frac{L_1 + L_2 + T_1 - T_2}{L_1 + L_2 + T_1 + T_2} \right)^2 = (L_1 + L_2 + T_1 - T_2)^2 \cdot \left(\frac{\mathcal{F}}{2\pi} \right)^2 \quad (2.15)$$

Damit ergibt sich für den Modenüberlapp:

$$\epsilon_1 = \frac{1 - \frac{P_{\text{refl}}}{P_{\text{in}}}}{1 - \left(\frac{T_p - T_f + L}{T_p + T_f + L} \right)^2} \quad (2.16)$$

Im Fall der in dieser Arbeit verwendeten fasergekoppelten Mikroresonatoren hängt die Transmission weiterhin vom Überlapp ϵ_2 der Resonatormode TEM00 mit der geführten Mode der optischen Faser ab. Verluste treten hier unter anderem durch eine nicht optimale Zentrierung des Mikrospiegels über dem lichtleitenden Kern der optischen Faser auf. Unter Kenntnis der gemessenen Transmission T_{max} , der Transmissionen der Spiegelschichten und des Modenüberlapps ϵ_1 erhält man ϵ_2 über:

$$T_{\text{max}} = \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \cdot T_{\text{max}}^{\text{theo}} \quad (2.17)$$

2.2.2 Gaußsche Strahlen, Wellenfronten

Die experimentelle Realisierung von Resonatoren mit zwei plan-parallelen Spiegeln ist herausfordernd, da diese sehr sensitiv auf Verkipfung der beiden Spiegel zueinander reagieren. Diese Verkipfung führt zu einer Reihe lateraler Verschiebungen der Welle nach jeder Reflexion und letztlich dazu, dass die Welle den Innenraum zwischen den Spiegeln verlässt. Aus diesem Grund verwenden stabile Resonatoren im Allgemeinen konkav gekrümmte Spiegel. Eine Lichtwelle, deren Wellenfronten in Ebenen im Abstand L_{Res} die gleiche Krümmung aufweisen wie die der Spiegel des Resonators im gleichen Abstand L_{Res} wird sich bei jeder Reflexion an den Spiegeln exakt selbst reproduzieren. Dieser Fall ist beispielhaft in Abbildung 2.5 dargestellt. Solche Wellen sind die *Moden* des Resonators. Sie werden durch Gauß-Strahlen beschrieben und liefern die Feldverteilung senkrecht zur Resonatorachse. Dieser Abschnitt widmet sich ihrer Herleitung gemäß dem Lehrbuch von Saleh und Teich.

Jede Lösung $U(\vec{r}, t)$ der Wellengleichung

$$\Delta U(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 U(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0 \quad (2.18)$$

ist eine mögliche optische Welle. Eine solche Welle wird durch

$$U(\vec{r}, t) = U(\vec{r}) e^{i2\pi\nu t} \quad (2.19)$$

mit komplexer, zeitunabhängiger Amplitude $U(\vec{r})$ und Frequenz ν vollständig beschrieben. Substitution von Gleichung 2.19 in 2.18 liefert eine Differentialgleichung (*Helmholtz Gleichung*) für die komplexe Amplitude $U(\vec{r})$.

$$\Delta U(\vec{r}) + k^2 U(\vec{r}) = 0, \quad k = \frac{2\pi\nu}{c} \quad (2.20)$$

Diese Gleichung wird beispielsweise von Ebenen Wellen der Form

$$U(\vec{r}, t) = A \cdot e^{-ik\vec{r}} \quad (2.21)$$

mit konstanter Amplitude A gelöst. Wir betrachten im folgenden nur achsennahe Strahlen in paraxialer Näherung. Ein paraxialer Strahl ist im Prinzip eine ebene Welle mit nur leicht variierender Amplitude $A(\vec{r})$.

$$U(\vec{r}) = A(\vec{r}) \cdot e^{-ikz} \quad (2.22)$$

Innerhalb einer Wellenlänge λ soll die Änderung der Amplitude vernachlässigbar sein. Das heißt

$$\frac{\partial A(\vec{r})}{\partial z} \cdot \lambda \ll A(\vec{r}), \quad \Rightarrow \quad \frac{\partial^2 A(\vec{r})}{\partial z^2} \cdot \lambda \ll \frac{\partial A(\vec{r})}{\partial z} \quad (2.23)$$

Ansatz 2.22 muss die Helmholtz-Gleichung 2.20 erfüllen. Hierzu berechnen wir

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} A(\vec{r}) e^{-ikz} = \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} A(\vec{r}) - 2ik \frac{\partial}{\partial z} A(\vec{r}) - k^2 A(\vec{r}) \right) e^{-ikz} \quad (2.24)$$

Gemäß Beziehung 2.23 können wir die Krümmung der Amplitude gegenüber ihrer Steigung vernachlässigen und wir erhalten

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} A(\vec{r}) e^{-ikz} \approx \left(2ik \frac{\partial}{\partial z} A(\vec{r}) - k^2 A(\vec{r}) \right) e^{-ikz} \quad (2.25)$$

Einsetzen dieses Resultats in die Helmholtzgleichung 2.20 liefert letztlich die *paraxiale Helmholtzgleichung*.

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} - 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right) A(\vec{r}) = 0 \quad (2.26)$$

Eine Lösung dieser Gleichung ist die paraboloidale Welle

$$A(\vec{r}) = \frac{A_1}{z} e^{-ik \frac{x^2+y^2}{2z}} \quad (2.27)$$

Eine Verschiebung dieser Lösung der Art

$$q(z) = z - \xi, \quad (2.28)$$

sodass eine paraboloidale Welle zentriert um den Nullpunkt $z=0$ entsteht lässt die Lösung unberührt. Wird $\xi = -iz_0$ rein komplex gewählt, erhält man direkt aus Gleichung die einhüllende des Gaußschen Strahls:

$$A(\vec{r}) = \frac{A_1}{q(z)} \cdot e^{-ik \frac{x^2+y^2}{2q(z)}}, \quad q(z) = z + iz_0 \quad (2.29)$$

Mit dem Ziel, die Amplitude und Phase dieser komplexen Einhüllenden zu trennen, trennen wir die komplexe Funktion $1/q(z)$ unter Definition zweier neuer realer Größen in $R(z)$ und $\omega(z)$ in ihren Realteil und Imaginärteil auf und erhalten:

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi \omega^2(z)} \quad (2.30)$$

Einsetzen dieser Beziehung in 2.29 und unter Verwendung von 2.22 gewinnen wir unmittelbar die komplexe Amplitude des Gaußschen Strahls:

$$U(\vec{r}) = A_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \cdot e^{-\frac{x^2+y^2}{\omega^2(z)}} \cdot e^{-ikz - ik \frac{(x^2+y^2)^2}{2R(z)} + i\zeta(z)} \quad (2.31)$$

Hier sind:

$$R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_0}{2} \right)^2 \right) \quad (2.32)$$

$$\omega^2(z) = \frac{\lambda z_0}{\pi} \cdot \left(1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right) = \omega_0^2 \cdot \left(1 + \left(\frac{z}{z_0} \right)^2 \right) \quad (2.33)$$

$$\zeta(z) = \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_0} \right) \quad (2.34)$$

Die Intensität des Strahls $I(r) = |U(\vec{r})|^2$ ist eine Funktion der axialen und radialen Position z und $\rho = x^2 + y^2$.

$$I(\rho, z) = I_0 \left(\frac{\omega_0}{\omega(z)} \right)^2 \cdot e^{-\frac{2\rho^2}{\omega^2(z)}} \quad (2.35)$$

An jedem Punkt z ist die Intensität eine Gaußfunktion in Abhängigkeit des radialen Abstandes ρ . In jeder transversalen Ebene wird die Intensität auf der Strahlachse maximal und innerhalb $\rho \leq \omega(z)$ befinden sich 86% der Gesamtintensität. Aus diesem Grund wird $\omega(z)$ als *Strahltaille* bezeichnet. Sie wird maximal auf der Strahlachse bei $z = 0$. $R(z)$ bezeichnet die Krümmung der parabolischen Wellenfronten.

2.2.3 Weitere Lösungen der paraxialen Helmholtzgleichung

Der im vorigen Abschnitt behandelte Gaußstrahl ist nicht die einzige Lösung der paraxialen Helmholtzgleichung. Von besonderem Interesse sind diejenigen Lösungen mit nicht gaußförmiger Intensitätsverteilung um die Strahlachse, aber mit den gleichen parabolischen Wellenfronten wie denen des Gaußschen Strahls. Diese Lösungen sind von der Form

$$U_{lm} = A_{lm} \frac{\omega_0}{\omega(z)} \mathcal{G}_l \left[\frac{\sqrt{2}x}{\omega(z)} \right] \mathcal{G}_m \left[\frac{\sqrt{2}y}{\omega(z)} \right] \times \exp \left[-ikz - ik \frac{x^2 + y^2}{2R(z)} + i(l + m + 1)\zeta(z) \right]. \quad (2.36)$$

Hierin bezeichnen ω_0 , $\omega(z)$ und $R(z)$ die Strahltaillen und den Krümmungsradius wie im Falle des Gaußstrahls. Außerdem ist

$$\mathcal{G}_l(u) = \mathcal{H}_l(u) \cdot e^{-u^2/2} \quad (2.37)$$

die *Hermite-Gaußfunktion* l -ter Ordnung. Für $l = 0$ ergibt sich hieraus die bereits bekannte Gaußfunktion. Im Intensitätsprofil sind l und m die Anzahl der Nullstellen (Knoten) entlang der x- und y-Richtung.

2.2.4 Resonatormoden

Betrachten wir einen Fabry-Perot Resonator bestehend aus zwei konkav gekrümmten Spiegeln mit Krümmungsradien R_1 und R_2 im Abstand L_{Res} . Genügen die Krümmungsradien und der Spiegelabstand der Bedingung

$$0 \leq \left(1 - \frac{L_{\text{Res}}}{R_1} \right) \left(1 - \frac{L_{\text{Res}}}{R_2} \right) \leq 1, \quad (2.38)$$

so spricht man von einem stabilen Resonator, in dem sich Moden in Form der oben beschriebenen Gauß-Strahlen ausbilden können. Ziel dieses Abschnitts ist die Berechnung

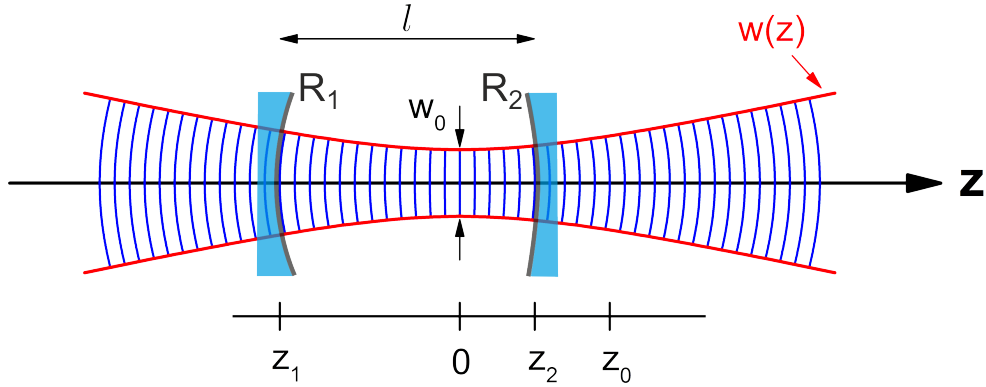


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung eines Gauß-Strahls als Mode in einem Resonator im Spiegelabstand l . Die Krümmungen der Wellenfronten an den Spiegelpositionen entsprechen den Krümmungen R_1 und R_2 der Resonatorspiegel an den Positionen z_1 und z_2 . An der Position $z = 0$ ist der Durchmesser des Strahls minimal (Strahltaille) (Bild entnommen aus [151])

der Strahltaille und der Krümmung eines solchen Strahls, die durch die Resonatorgeometrie vollständig gegeben sind (Abbildung 2.5).

Die Spiegel befinden sich an den Positionen z_1 und

$$z_2 = z_1 + L_{\text{Res}}. \quad (2.39)$$

Das Zentrum des Strahls liegt im Ursprung $z = 0$. Die Positionen z_1 und z_2 können aus der Bedingung bestimmt werden, dass die Krümmung der Spiegel gerade der Krümmung des Strahls entsprechen muss. Diese ist nach obigem Abschnitt:

$$R_1(z_1) = z_1 \left(1 + \left(\frac{z_0}{z_1} \right)^2 \right), \quad -R_2(z_2) = z_1 \left(1 + \left(\frac{z_0}{z_2} \right)^2 \right) \quad (2.40)$$

Beachte, dass für konkav gekrümmte Spiegel die Krümmungsradien negativ sind, für $z > 0$ die Krümmung der Wellenfront jedoch als positiv angenommen wird. Aus den Beziehungen 2.39 und 2.40 lassen sich die Positionen

$$z_1 = \frac{-L_{\text{Res}}(R_2 + L_{\text{Res}})}{R_1 + R_2 + L_{\text{Res}}} \quad (2.41)$$

$$z_2 = z_1 + L_{\text{Res}} \quad (2.42)$$

$$z_0^2 = \frac{-L_{\text{Res}}(R_1 + L_{\text{Res}})(R_2 + L_{\text{Res}})(R_2 + R_1 + L_{\text{Res}})}{(R_2 + R_1 + 2L_{\text{Res}})^2} = \left(\frac{\omega_0^2 \pi}{\lambda} \right)^2 \quad (2.43)$$

berechnen. Hierdurch sind Krümmung und Strahldurchmesser der Mode vollständig bestimmt. Für den Fall eines Resonators aus einem Planspiegel ($R_1 = \infty$) und einem

gekrümmten Spiegel ($R_2 = R$) vereinfachen sich diese Beziehungen zu:

$$z_1 = 0, \quad z_2 = L_{\text{Res}}, \quad z_0 = L_{\text{Res}} \cdot \sqrt{\frac{|R|}{L_{\text{Res}}} - 1} \quad (2.44)$$

Die Strahltaile liegt demnach auf dem Planspiegel mit dem Wert:

$$\omega_0 = \left(\frac{\lambda L_{\text{Res}}}{\pi} \cdot \sqrt{\frac{|R|}{L_{\text{Res}}} - 1} \right)^{1/2} \quad (2.45)$$

Zur Realisierung eines stabilen Resonators muss in diesem Fall gemäß 2.38 die Resonatorlänge kleiner werden als der Krümmungsradius R des gekrümmten Spiegels. Diesen Grenzfall erkennt man ebenso in Gleichung 2.45. Nur unter der Bedingung $L_{\text{Res}} < |R|$ existiert die Strahltaile als reeller Wert. Über die Strahltaile erhält man außerdem Zugang zu einer weiteren Größe eines Resonators. Das *Modenvolumen* V_{mod} ergibt sich aus der Strahltaile ω_0 für einen Resonator aus einem Planspiegel und einem gekrümmten Spiegel zu [152]:

$$V_{\text{mod}} = \frac{\pi}{4} \omega_0^2 \cdot L \quad (2.46)$$

Abbildung 2.6 vergleicht typische Werte für die Strahldurchmesser und die Modenvolumina für die in dieser Arbeit konstruierten Mikroresonatoren ($R=10 \mu\text{m}$, $L_{\text{Res}} < 10 \mu\text{m}$) mit dem Laserresonator eines typischen Helium-Neon-Lasers ($R=45 \text{ cm}$, $L_{\text{Res}} < 40 \text{ cm}$). Für die hier angestrebten Mikroresonatoren sind die Strahldurchmesser auf Planspiegel und gekrümmtem Spiegel $< 10 \mu\text{m}$, was bei Resonatorlängen von kleiner $3 \mu\text{m}$ zu Modenvolumina zwischen $V_{\text{mod}} = (1 - 10)\lambda^3$ führt. Für den Resonator im Helium-Neon-Laser erhält man typischerweise Strahldurchmesser zwischen $100 \mu\text{m} - 500 \mu\text{m}$ mit deutlich größeren Modenvolumina in der Größenordnung $10^{10}\lambda^3$.

2.2.5 Moden höherer Ordnung

Im vorigen Abschnitt wurden neben den Gaußstrahlen weitere Lösungen der paraxialen Helmholtzgleichung berechnet. Diese besitzen im Gegensatz zum Gaußstrahl zwar Nullstellen in ihrer Intensitätsverteilung in der x-y-Ebene, weisen jedoch die gleiche Krümmung der Wellenfronten auf. Somit stellen auch diese Strahlen Moden eines (sphärischen / halbsphärischen) Resonators dar (*Hermite-Gauß-Moden*). Die Resonanzfrequenzen ergeben sich wiederum aus der Bedingung, dass pro Umlauf der Welle im Resonator eine Phase von 2π aufgesammelt werden muss:

$$\nu_{l,m,n} = n \cdot \text{FSR} + (l + m + 1) \frac{\Delta\zeta}{\pi} \text{FSR} \quad (2.47)$$

Moden mit gleichem n , aber unterschiedlichem (l,m) weisen identische Intensitätsverteilungen auf. Sie werden als *longitudinale* Moden bezeichnet. Moden mit unterschiedlichem (l,m) weisen unterschiedliche Intensitätsverteilungen in der x-y-Ebene auf. Sie

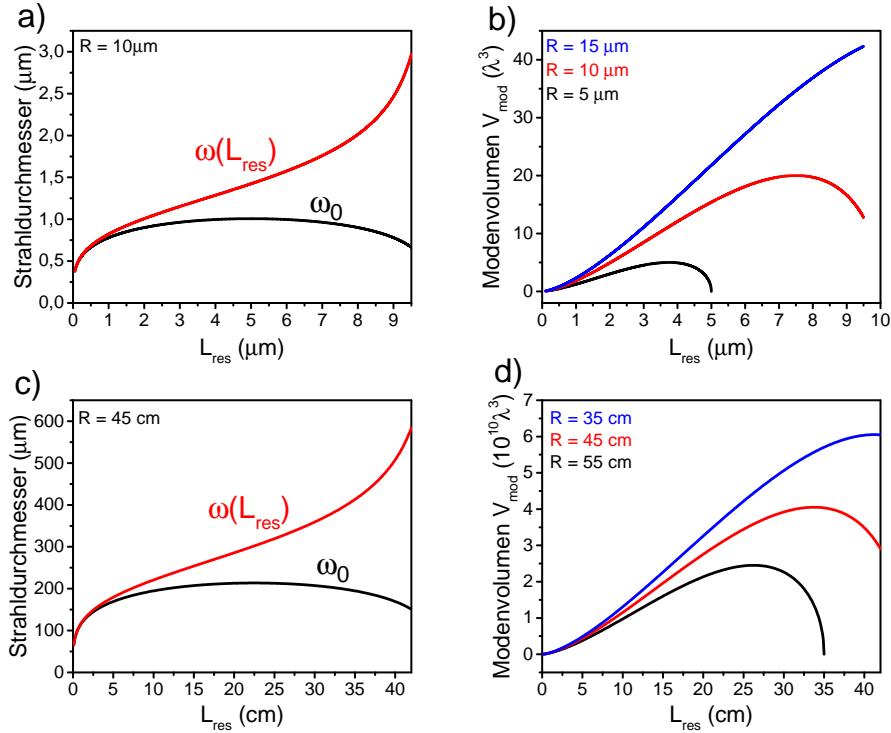


Abbildung 2.6: a),b): Strahldurchmesser in einem Resonator auf Planspiegel (ω_0) und gekrümmtem Spiegel ($\omega(L_{\text{Res}})$) mit Krümmungsradius $R=10 \mu\text{m}$ und entsprechende Modenvolumina bei einer Wellenlänge von $\lambda=637 \text{ nm}$. c),d): Gleiche Berechnungen wie in a) und b) für den Resonator eines Helium-Neon-Lasers. Die Strahldurchmesser liegen 2 Größenordnungen über denen des Mikroresonators aus a). Die Modenvolumina liegen aufgrund des deutlich längeren Resonators um 10 Größenordnungen über den Werten aus b).

werden daher als *transversale* Moden bezeichnet und liegen bei höheren Frequenzen als die longitudinale Grundmode. Aus Bedingung 2.47 lassen sich zusammenfassend folgende Eigenschaften der Hermite-Gauß-Moden angeben:

1. Zwei longitudinale Moden $(n; n+1)$ zu einer gemeinsamen transversalen Mode (gleiches (l, m)) sind über den freien Spektralbereich $FSR = c/2L_{\text{Res}}$ voneinander getrennt. Dies entspricht exakt der Bedingung 2.4.
2. Alle transversalen Moden mit gleicher Summe $l+m$ besitzen die gleichen Resonanzfrequenzen
3. Zwei transversale Moden mit Indizes (l, m) und (l', m') zur gleichen longitudinalen Mode n liegen im Frequenzabstand

$$\nu_{l,m,n} - \nu_{l',m',n} = [(l+m) - (l'+m')] \frac{\Delta\zeta}{\pi} FSR \quad (2.48)$$

2.3 Resonator Atom Wechselwirkung

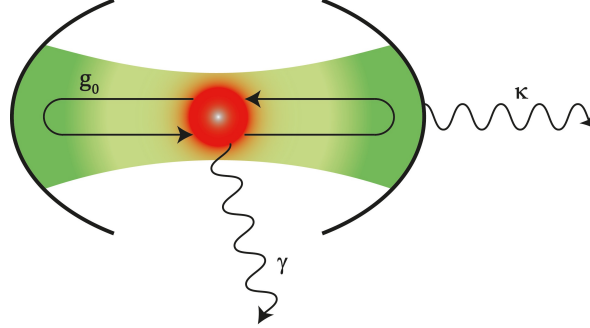


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der Kopplung eines Emitters an eine Resonatormode. Die Kopplung wird bestimmt über das Verhältnis der inkohärenten Zerfallsraten γ und κ des Emitters und des Resonators und der kohärenten Kopplungsrate g_0 bestimmt.

Die Wechselwirkung zwischen einem atomaren Zwei-Level-System mit Grundzustand $|0\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ mit den Energien $\hbar\omega_0$ und $\hbar\omega_e$ und einer Resonatormode mit Energie $\hbar\omega_c$ wird im Rahmen der Quantenelektrodynamik beschrieben durch den Jaynes-Cummings-Formalismus. Der Hamilton Operator für das System lautet:

$$\hat{H}^{JC} = \hbar\omega_0\hat{\sigma}_{00} + \hbar\omega_e\hat{\sigma}_{ee} + \hbar\omega_c\hat{a}^\dagger\hat{a} + \hbar(g_0\hat{\sigma}_{0e}^\dagger - g_0^*\hat{\sigma}_{0e})(\hat{a} - \hat{a}^\dagger) \quad (2.49)$$

Hier bezeichnen σ_{ij} die Übergangsmatrizen zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|e\rangle$. Für $i = j$ erhält man die Besetzungszahloperatoren der jeweiligen Zustände. Darüberhinaus ist

$$g_0 = \left(\frac{3c\lambda^2\gamma}{8\pi V_{\text{mod}}} \right)^{1/2} \propto \frac{1}{\sqrt{V_{\text{mod}}}} \quad (2.50)$$

die kohärente Kopplungsrate zwischen Emitter und Resonatormode. Die Operatoren \hat{a} und \hat{a}^\dagger sind der Vernichter- und Erzeugeroperator für Photonen in der Resonatormode. Reale Systeme koppeln stets an ein äußeres Reservoir. In unserem Fall müssen wir besonders die spontane Zerfallsrate γ des Emitters vom angeregten Zustand $|e\rangle$ in den Grundzustand $|0\rangle$ und den Verlust von Photonen aus der Resonatormode mit der Resonatorzerfallsrate κ in die Beschreibung aufnehmen. Die Dynamiken solcher Systeme werden durch Master-Gleichungen Formalismen beschrieben. Unter der Voraussetzung, dass das System keine *Erinnerung* besitzt, dh. die Korrelation zwischen dem äußeren Reservoir und dem zu beschreibenden System viel schneller ablaufen, als die Dynamik des Systems selbst (Markov-Näherung), lautet die Master-Gleichung:

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \hat{\rho}] + \hat{\mathcal{L}}_{\text{diss}}[\hat{C}_m, \hat{\rho}] \quad (2.51)$$

Der Superoperator $\hat{\mathcal{L}}_{\text{diss}}[\hat{C}_m, \hat{\rho}]$ enthält in dieser Darstellung alle erwähnten dissipativen Effekte. Er kann in der Lindblad-Form mit Hilfe der Kollaps Operatoren C_m

ausgedrückt werden:

$$\hat{\mathcal{L}}_{\text{diss}}[\hat{C}_m, \hat{\rho}] = \sum_m \left(\hat{C}_m \hat{\rho} \hat{C}_m^\dagger - \frac{1}{2} \left(\hat{\rho} \hat{C}_m^\dagger \hat{C}_m + \hat{C}_m^\dagger \hat{C}_m \hat{\rho} \right) \right). \quad (2.52)$$

Wie oben erwähnt, nehmen wir an dieser Stelle den spontanen Zerfall γ des Emitters und den Zerfall κ des Resonators als Dissipationsmechanismen in die Beschreibung auf:

$$\hat{\mathcal{L}}_{\text{diss}}^{\text{at}} = \sqrt{\gamma} \hat{\mathcal{L}}[\hat{\sigma}_{0e}, \hat{\rho}] \quad \text{und} \quad \hat{\mathcal{L}}_{\text{diss}}^{\text{res}} = \sqrt{\kappa} \hat{\mathcal{L}}[\hat{a}, \hat{\rho}] \quad (2.53)$$

Die Wechselwirkung zwischen einem atomaren Übergang und dem elektrischen Feld innerhalb eines Resonators wird grundsätzlich über das Verhältnis der Zerfallsrate κ des Resonators, den nicht resonanten Zerfall γ des Emitters und die kohärente Atom-Photon Kopplungsrate g_0 bestimmt (Abbildung 2.7).

Gilt für das zu untersuchende System die Bedingung $(\kappa, \gamma) \ll g_0$, so befindet sich das System im Bereich der *starken Kopplung*. Ein von dem Emitter in die Resonatormode abgestrahltes Photon kann nach einigen Umläufen im Resonator wieder mit dem Emitter selbst wechselwirken. Gilt umgekehrt $(\kappa, \gamma) \gg g_0$, spricht man von *schwacher Kopplung*. In die Resonatormode emittierte Photonen verlassen den Resonator schneller, als dass eine erneute Wechselwirkung mit dem Emitter selbst möglich wäre. Zur Einordnung des Systems in die beiden Bereiche definiert man die folgenden dimensionslosen Parameter:

$$N_0 = \frac{2\kappa\gamma}{g_0^2} \quad (\text{kritische Atomzahl}) \quad (2.54)$$

$$n_0 = \frac{4\gamma^2}{3g_0^2} \quad (\text{kritische Photonenzahl}) \quad (2.55)$$

$$C = \frac{1}{N_0} = \frac{g_0^2}{2\kappa\gamma} \quad (\text{Kooperativität}) \quad (2.56)$$

Die kohärente Kopplungsrate g_0 ist nach Beziehung 2.50 neben der spontanen Emissionsrate γ des gekoppelten Emitters vor allem durch das Modenvolumen $\sqrt{V_{\text{mod}}}$ der Resonatormode bestimmt. Kleine Modenvolumina führen zu hohen Kopplungsraten. Wie wir bereits in Abbildung 2.6 gesehen haben, sind zur Realisierung möglichst geringer Modenvolumina möglichst kleine Resonatoren mit ebenso kleinen Krümmungsradien R der gekrümmten Spiegel notwendig.

Abhängig vom untersuchten Limit wird man unterschiedliche Effekte des Resonators auf den Emitter beobachten. Sie reichen von kohärentem Besetzungstransfer (Rabi-Oszillationen) zwischen Resonatormode und Emitter ($C \gg 1$) bis zur Überhöhung oder Unterdrückung der Spontanemission (Purcell-Effekt) des gekoppelten Emitters ($C \approx 1$). Für uns ist insbesondere der zweite Fall interessant, weswegen wir im Folgenden auch nur diesen detaillierter betrachten. Für $(\kappa, \gamma) \gg g_0$ ist der Zerfall des Emitters (wie auch bei der Spontanemission im freien Raum) ein irreversibler Prozess.

Es dominieren die inkohärenten Zerfälle γ und κ des Emitters und des Resonators. Dennoch sieht der Emitter im Resonator verglichen mit dem freien Raum eine modifizierte Photonenzustandsdichte. Ziel dieses Abschnittes ist der Vergleich der spontanen Zerfallsraten des Emitters in den freien Raum mit der Zerfallsrate in den Resonator. Wir werden sehen, dass die Anwesenheit einer Resonatormode die Spontanemission des Emitters sowohl überhöhen als auch unterdrücken kann (*Purcell-Effekt*). Die Beschreibung erfolgt im Wesentlichen nach [153].

Spontanemission im freien Raum

Die spontane Zerfallsrate eines atomaren Dipolübergangs ist durch Fermis Goldene Regel gegeben:

$$W_{\text{frei}} = \frac{2\pi}{\hbar^2} |M_{12}|^2 g(\omega) \quad (2.57)$$

Hier sind

$$g(\omega) = \frac{\omega^2 V_0}{\pi^2 c^3} \quad (2.58)$$

die Zustandsdichte für Photonen im freien Raum und

$$|M_{12}| = \langle \vec{p} \cdot \vec{E}_{\text{vac}} \rangle = \xi \mu_{12} E_{\text{vac}} \quad (2.59)$$

das Dipolmatrixelement des Übergangs. Im freien Raum ohne zusätzliche elektrischen Felder koppelt der in einer Richtung

$$\xi = \frac{|\vec{p} \cdot \vec{E}_{\text{vac}}|}{|\vec{p}| \cdot |\vec{E}_{\text{vac}}|} \quad (2.60)$$

relativ zum elektrischen Feld orientierte Dipol an das Vakuumfeld

$$E_{\text{vac}} = \left(\frac{\hbar \omega}{2\epsilon_0 V_0} \right)^{1/2}. \quad (2.61)$$

Da das Vakuumfeld keine Vorzugsrichtung aufweist muss über alle Orientierungen gemittelt werden ($\xi^2 = 1/3$) und wir erhalten zusammengefasst:

$$W_{\text{frei}} = \frac{1}{\tau_{\text{Frei}}} = \frac{2\mu_{12}^2 \omega^3}{3\pi\epsilon_0 \hbar c^3} \quad (2.62)$$

Spontanemission in Resonatormode

Im realen Resonator mit Modenvolumen V_0 existieren mehrere Moden. Wir nehmen an, dass sich nur eine Mode mit Resonanzfrequenz ω_c in der Nähe der Frequenz ω des atomaren Übergangs befindet, an die der Emitter koppelt. Als Zustandsdichte dieser Mode wählen wir eine Lorentzfunktion mit Zentralfrequenz ω_c und Halbwertsbreite $\Delta\omega_c$.

$$g(\omega) = \frac{2}{\pi \Delta\omega_c} \cdot \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \Delta\omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (2.63)$$

Analog zu obigem Fall gilt für das Dipolmatrixelement

$$|M_{12}| = \langle \vec{p} \cdot \vec{E}_{\text{vac}} \rangle = \xi \cdot \mu_{12} \cdot E_{\text{vac}} = \xi \cdot \mu_{12} \cdot \left(\frac{\hbar \omega}{2\epsilon_0 V_0} \right)^{1/2}. \quad (2.64)$$

Im Gegensatz zum freien Raum ist das elektrische Feld der Resonatormode gerichtet, weswegen wir nicht mehr über alle Orientierungen des Dipols zum Feld mitteln dürfen. Einsetzen in Fermis Goldene Regel 2.57 liefert:

$$W_{\text{Res}} = \frac{1}{\tau_{\text{Res}}} = \frac{2\mu_{12}^2}{\hbar\epsilon_0 V_0} \frac{\omega}{\Delta\omega_c} \xi^2 \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (2.65)$$

Ein Vergleich zwischen 2.62 und 2.65 ergibt die durch den Resonator modifizierte Spontanemission:

$$F_P = \frac{W_{\text{Res}}}{W_{\text{frei}}} = \frac{\tau_{\text{frei}}}{\tau_{\text{Res}}} = \frac{6\pi}{V_0} \cdot \frac{\omega}{\Delta\omega_c} \cdot \frac{c^3}{\omega^3} \cdot \xi^2 \cdot \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2} \quad (2.66)$$

Auf Resonanz mit dem Emitter ($\omega = \omega_c$) und bei optimaler Ausrichtung des Dipols zum Resonatorfeld vereinfacht sich dieser Ausdruck unter Verwendung des Gütefaktors ($Q = \omega_c / \Delta\omega_c$) zu

$$F_P = \frac{3Q\lambda^3}{4\pi^2 V_0} \quad (\text{Purcell-Faktor}). \quad (2.67)$$

Dies ist das Hauptresultat dieses Abschnitts. Der Purcell-Faktor beschreibt die Modifikation der Spontanemission eines Emitters auf Resonanz mit einer Resonatormode im Vergleich zur Abstrahlung in den freien Raum. $F_P > 1$ ($F_P < 1$) bedeutet eine Verkleinerung (Vergrößerung) der Lebensdauer des angeregten Zustandes. Die Erhöhung der Spontanemission auf Resonanz mit der Resonatormode ist ein Resultat der stark erhöhten Zustandsdichte bei ω_c . Im Gegensatz dazu ist die Photonenzustandsdichte für $\omega \neq \omega_c$ stark reduziert. Hohe Purcell-Faktoren erfordern Resonatoren hoher Güte Q mit kleinen Modenvolumina V_0 . Mit Hilfe des Purcell-Faktors lässt sich nun ebenso der Anteil β der in die Resonatormode abgestrahlten Photonen im Vergleich zur Gesamtemission bestimmen:

$$\beta = \frac{W_{\text{Res}}}{W_{\text{frei}} + W_{\text{Res}}} = \frac{F_P}{1 + F_P} \quad (2.68)$$

In der bisherigen Betrachtung sind wir stets davon ausgegangen, dass die Linienbreiten der Emitter nur durch die spontane Zerfallsrate γ des angeregten Zustands (Fourier-limit) gegeben ist und in etwa mit der durch κ beschriebenen Resonatorlinienbreite übereinstimmt. Die in dieser Arbeit untersuchten Emitter in Festkörpersystemen erfahren durch die Wechselwirkung mit dem sie umgebenden Kristallgitter bei Raumtemperatur jedoch starke Linienverbreiterungen. Diese modellieren wir an dieser Stelle mit einer Dephasierungsrate γ^* , sodass gilt:

$$\gamma^* \gg (\gamma, \kappa) \gg g_0 \quad (2.69)$$

Die Gesamtlinienbreite des Emitters ist in diesem Fall $(\gamma + \gamma^*)$. In diesem Fall liegt nur noch ein Anteil

$$\frac{\kappa}{\gamma + \gamma^*} \quad (2.70)$$

der Resonatorlinienbreite innerhalb der Emitterlinienbreite und wir erhalten einen modifizierten Purcell-Faktor

$$F_P^* = \frac{g_0^2}{\kappa\gamma} \cdot \frac{\kappa}{(\gamma + \gamma^*)} = \frac{g_0^2}{(\gamma + \gamma^*)\gamma} \approx \frac{g_0^2}{\gamma^*\gamma} \quad (2.71)$$

Dieser ist insbesondere unabhängig von der Resonatorlinienbreite κ . In Kapitel 2.4 werden wir für die Kopplung solcher linienverbreiteter festkörperbasierte Systeme (insbesondere das NV-Zentrum in Diamant) ein ausführliches Modell entwickeln und Methoden beschreiben, wie dennoch Purcell-Faktoren $F_P > 1$ erreicht werden können.

2.4 Kopplung von Festkörperemittern an Mikroresonatoren

Die Emissionsbandbreite breitbandiger Festkörperemitter wird normalerweise als Nachteil für Kopplungsexperimente an schmalbandige Resonatormoden angesehen. Typische Effekte wie Überhöhung der spontanen Zerfallsrate oder kohärenter Besetzungstransfer, wie sie aus Atom-Resonator-Kopplungsexperimenten bekannt sind, sind lediglich beobachtbar, wenn die Emissionslinienbreiten der Emitter schmäler sind als die Resonatorlinienbreiten. Theoretische Untersuchung der Kopplung breitbandiger Halbleiter-Quantenpunkte an optische Resonatoren zeigten jedoch, dass der Resonator einen positiven Einfluss auf das Gesamtsystem auswirkt und nicht nur einen spektralen und räumlichen Filter darstellt. Auch bei starker Verstimmung zwischen der Zentralwellenlänge des breiten Emitters und der Resonanzwellenlänge des Resonators ist das Spektrum des gekoppelten Systems durch den Resonator bestimmt [47, 48, 154]. Das zu Grunde liegende Modell beruht auf einem Prozess reiner Dephasierung, durch den Photonen aus den Seitenbanden der Emitter in die Resonatormode eingekoppelt werden. Das dort entwickelte Masergleichungsmodell wurde 2013 für die Kopplung einzelner NV-Zentren in Diamant zur Beschreibung entsprechender Kopplungsexperimente bei Raumtemperatur erweitert und war in die Lage, die beobachteten Messergebnisse quantitativ zu reproduzieren [45, 155]. Darüberhinaus konnten mit Hilfe dieses Modells Aussagen über zu erwartende Ergebnisse in Tieftemperaturexperimenten getroffen werden, die auch in Kopplungsexperimenten mit NV-Zentren Übergänge in ein Purcell-überhöhtes Regime vorhersagen. Dieser Abschnitt stellt dieses Modell vor und motiviert im Zuge dessen die Verwendung anderer Festkörperemitter wie Silizium-Fehlstelle Zentren in Diamant oder Quantenemittern in hexagonalem Bornitrid zur Kopplung an Mikroresonatoren. In Abbildung 2.8a) ist ein vereinfachtes Levelschema eines atomaren Systems gezeigt, das neben einem rein elektronischen Übergang (ZPL) auch unter Emission von Phononen vom elektronisch angeregten Zustand in den Grundzustand zerfallen kann. Aus

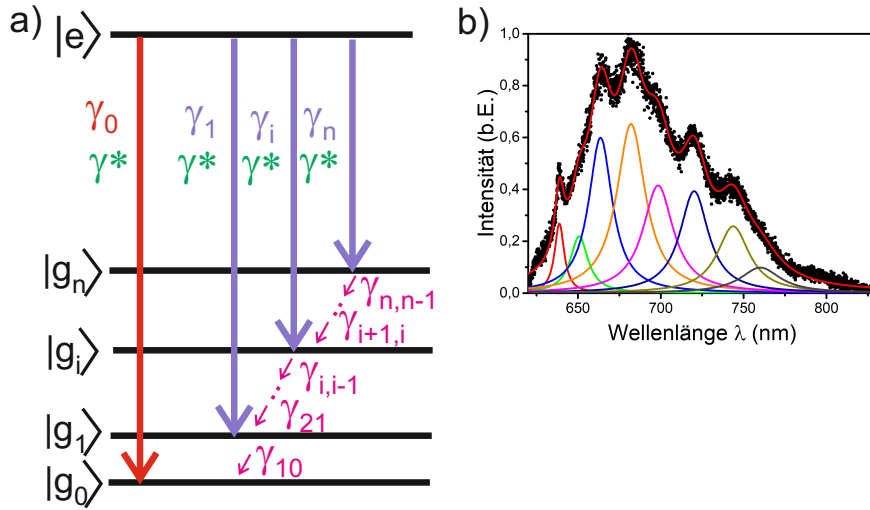


Abbildung 2.8: a) Vereinfachtes zwei Niveau-System für das Emitter-Resonator System. Beteiligt sind neben des elektronischen Grund und angeregten Zustands weitere vibronische Zustände im elektronischen Grundzustand. Zur Erläuterung der Parameter: siehe Text. b) Beispielhafte Anpassung des Spektrums eines einzelnen NV-Zentrums in einem Nanodiamant zur Extraktion aller im Modell benötigter Parameter (Details: siehe Text).

dem angeregten Zustand $|e\rangle$ zerfällt der Defekt entweder über die Null-Phononen-Linie mit der spontanen Zerfallsrate γ_0 oder in das Phononenseitenband mit Rate γ_i . In Abbildung 2.8b) ist am Beispiel eines NV-Zentrums in Diamant gezeigt, wie die Anzahl der möglichen Zerfälle in das Phononenseitenband durch Anpassung des Spektrums gewonnen werden kann. Wir reproduzieren das Spektrum mit einer Gesamtzahl von 8 unterliegenden Zerfallskanälen, jeder repräsentiert durch eine der dargestellten Lorentzkurven, wobei die rote Kurve den ZPL-Übergang darstellt. Somit erhalten wir 7 Zerfallskanäle in das Phononenseitenband, bei deren Übergängen neben eines im Vergleich zur ZPL rotverschobenen Photons auch ein Phonon emittiert wird. Die Relaxationszeiten $\gamma_{i,i-1}$ sind im Vergleich zur spontanen elektronischen Zerfallsrate deutlich geringer, was in deutlich breiteren Linienbreiten der Seitenbänder resultiert. Außerdem wird jedem Übergang eine homogene Zerfallsrate γ^* zugeordnet. Diese ist die reine Dephasierung des elektronischen Übergangs und beschreibt die Linienbreite des Null-Phononen-Übergangs. Speziell für das NV-Zentrum wird diese Linienverbreiterung durch den dynamischen Jahn-Teller-Effekt im angeregten Zustand hervorgerufen. Alle Raten können unmittelbar aus dem angepassten Spektrum in Abbildung 2.8b) gewonnen werden. Man beachte, dass das NV-Zentrum bislang lediglich beispielhaft erwähnt wurde. Das gleiche Vorgehen lässt sich ebenso auf andere Festkörperemitter anwenden. Unterscheiden wird sich die Berechnung lediglich in der Anzahl n der beobachtbaren Seitenbändern.

Wir berechnen nun die Zeitentwicklung der Dichtematrix eines solchen gekoppelten Systems durch die Master-Gleichung in Lindblad Form (Markov-Näherung). Wir nehmen zunächst eine beliebige Anzahl n von Seitenbändern an und vergleichen im Anschluss zu erwartende Resultate in Kopplungsexperimenten mit sowohl NV-Zentren in Diamant als auch den in dieser Arbeit behandelten Quantenemittern in hexagonalem Bornitrid.

$$\dot{\hat{\rho}} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \hat{H}^{\text{JC}}] + \hat{\mathcal{L}}_{\text{damp}}^{\text{cav}} + \hat{\mathcal{L}}_{\text{damp}}^{\text{at}} + \hat{\mathcal{L}}_{\text{deph}}^{\text{at}} + \hat{\mathcal{L}}_{\text{GS-Relax}}^{\text{at}} \quad (2.72)$$

Dabei ist

$$\hat{H}^{\text{JC}} = \hbar \left[\sum_{i=0}^n \omega_i \hat{\sigma}_{ii} + \omega_e \hat{\sigma}_{ee} + \omega_c \hat{a} \hat{a}^\dagger + i \cdot \sum_{i=0}^n g_i \left(\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_{ie} - \hat{\sigma}_{ie}^\dagger \hat{a} \right) \right] \quad (2.73)$$

der Jaynes Cummings Hamiltonoperator für dieses System, der die kohärente Entwicklung beschreibt. Die restlichen Terme enthalten die oben bereits aufgeführten inkohärenten Prozesse. Diese sind:

1. Der Zerfall aus dem Resonator mit Rate κ :

$$\mathcal{L}_{\text{damp}}^{\text{cav}} = \kappa \cdot \mathcal{L} [\hat{a}, \hat{\rho}] \quad (2.74)$$

2. Der atomare Zerfall mit Rate $\gamma = \sum_{i=0}^n \gamma_i$:

$$\hat{\mathcal{L}}_{\text{damp}}^{\text{at}} = \sum_{i=0}^n \gamma_i \mathcal{L} [\hat{\sigma}_{ie}, \hat{\rho}] \quad (2.75)$$

3. Die reine Dephasierung des Emitters mit Rate γ^*

$$\hat{\mathcal{L}}_{\text{deph}}^{\text{at}} = \frac{\gamma^*}{4} (\hat{\sigma}_{ze} \hat{\rho} \hat{\sigma}_{ze} - \hat{\rho}) = -\frac{\gamma^*}{2} \begin{pmatrix} 0 & \rho_{12} & \rho_{13} & \dots & \rho_{1n} \\ \rho_{21} & 0 & 0 & \dots & 0 \\ \rho_{31} & 0 & 0 & \dots & 0 \\ \rho_{41} & 0 & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \dots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \dots & \vdots \\ \rho_{n1} & 0 & 0 & \dots & 0 \end{pmatrix} \quad (2.76)$$

4. Die Relaxation aus den angeregten vibronischen Zuständen in den Grundzustand mit den Raten $\gamma_{i+1,i}$,

$$\hat{\mathcal{L}}_{\text{GS-Relax}}^{\text{at}} = \sum_{i=0}^n \gamma_{i+1,i} \mathcal{L} [\hat{\sigma}_{i,i+1}, \hat{\rho}] \quad (2.77)$$

Hierbei sind die ω_i die Übergangsfrequenzen der Übergänge vom angeregten Zustand $|e\rangle$ in jeweils den entsprechenden vibronischen Zustand des elektronischen Grundzustandes. ω_c stellt die Resonanzfrequenz des Resonators dar, $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ ist der Besetzungszahloperator für die Anzahl Photonen, die sich in der Resonator Mode befinden und die $n \times n$ -Matrizen σ_{ij} sind für $i \neq j$ die Übergangsoperatoren zwischen den Niveaus des Systems und für $i = j$ die Besetzungszahloperatoren dieser Niveaus.

$$\hat{\sigma}_{ij} = \begin{matrix} & j \\ i & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 1 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \dots \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \dots \end{pmatrix} \end{matrix} \quad (2.78)$$

Unter Ausnutzung der Beziehungen

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1, \quad \hat{\sigma}_{ij} \hat{\sigma}_{kl} = \delta_{jk} \hat{\sigma}_{il}, \quad \hat{\sigma}_{ij}^\dagger = \hat{\sigma}_{ji} \quad (2.79)$$

und der Tatsache, dass zyklische Vertauschung die Spur aus dem Produkt dreier Operatoren unverändert lässt, d.h.

$$\text{tr}(ABC) = \text{tr}(BCA) = \text{tr}(CAB) \quad (2.80)$$

lassen sich mit Hilfe von

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{tr}(\hat{\rho} \hat{O}) \Rightarrow \frac{d}{dt} \langle \hat{O} \rangle = \text{tr}(\dot{\hat{\rho}} \hat{O}) \quad (2.81)$$

nun die zeitlichen Entwicklungen der Erwartungswerte $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ und $\langle \hat{\sigma}_{ee} \rangle$ für die Besetzung der Resonatormode bzw. des angeregten Zustandes berechnen. Auswertung aller auftretenden Terme liefert:

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle = -\kappa \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle + \sum_{i=0}^n g_i \left(\langle \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_{ie} \rangle + \langle \hat{\sigma}_{ie}^\dagger \hat{a} \rangle \right) \quad (2.82)$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_{ee} \rangle = -\sum_{i=0}^n \gamma_i - \sum_{i=0}^n g_i \left(\langle \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_{ie} \rangle + \langle \hat{\sigma}_{ie}^\dagger \hat{a} \rangle \right) \quad (2.83)$$

Neben den Termen, die die direkten Zerfälle sowohl aus Resonatormode als auch aus dem angeregten Zustand angeben, beinhalten diese beiden Ausdrücke weitere Terme, die die kohärente Wechselwirkung zwischen NV-Zentrum und Resonator beschreiben. Wir treffen im Folgenden die Annahme, dass die inkohärenten Zerfallsraten γ^* und κ sehr viel größer sind als die Raten $g_0 \dots g_n$, die die Zeitskala der kohärenten Wechselwirkung bestimmen. In diesem Fall können wir alle Kohärenzterme adiabatisch eliminieren. Dazu werden die zeitlichen Ableitungen der Erwartungswerte der obigen Kohärenzterme

$\langle \sigma_{ij}^\dagger a \rangle$ und $\langle a^\dagger \sigma_{ij} \rangle$ gleich 0 gesetzt, was explizite Ausdrücke für die Kohärenzen liefert [45]. Beschränken wir uns im Anschluss auf den Unterraum, in dem nur maximal 1 Photon in der Resonatormode vorhanden sein kann ($\kappa \gg \gamma$), erhalten wir Vereinfachungen der obigen Gleichungen in Form eines klassischen gekoppelten Ratengleichungsmodells (mit $\gamma = \sum_{i=0}^n \gamma_i$)

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle = -(\kappa + R_0) \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle + \left(\sum_{i=1}^n R_i \right) \langle \hat{\sigma}_{ee} \rangle \quad (2.84)$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{\sigma}_{ee} \rangle = - \left(\gamma + \sum_{i=1}^n R_i \right) \langle \hat{\sigma}_{ee} \rangle + R_0 \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \quad (2.85)$$

R_i bezeichnen für jeden möglichen Übergang im NV-Zentrum eine effektive Kopplungsrate an die Resonator-Mode. Dementsprechend steht R_0 für die Kopplung der ZPL an den Resonator, während $R_1 \dots R_n$ die Kopplung der Seitenbänder beschreiben. Diese Raten ergeben sich unmittelbar aus den gekoppelten Gleichungen zu (Herleitung siehe [45, 151, 155]):

$$R_0 = \frac{4g_0^2}{\kappa + \gamma + \gamma^*} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta_0}{\kappa + \gamma + \gamma^*} \right)^2} \quad (2.86)$$

$$R_i = \frac{4g_i^2}{\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta_i}{\kappa + \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^*} \right)^2}, \quad i \geq 1 \quad (2.87)$$

$\delta_i = \omega_i - \omega_c$ ist die Verstimmung der Übergangsfrequenz von der Resonanz des Resonators. R_0 ist die Zerfallsrate des Null-Phononen-Übergangs in die Resonatormode, während R_i die Zerfallsraten aus dem i -ten Seitenband in den Resonator beschreiben. Aus diesem Ratengleichungsmodell kann nun die Effizienz bestimmt werden, mit der Photonen über einen der n möglichen Zerfallskanäle in die Resonatormode zerfallen. Diese ergibt sich aus den jeweiligen Verhältnissen der Zerfallsraten in den Resonator und aller möglicher Zerfallskanäle:

$$P_i = \frac{R_i}{\gamma + \sum_j R_j} \quad (2.88)$$

Die Gesamteffizienz der Emission eines gekoppelten Emitters in die Resonatormode erhält man demnach über

$$P_{\text{tot}}(\lambda) = \sum_{i=1}^n P_i \quad (2.89)$$

i	e_i	ν_i [THz]	w_i [THz]
0	0,02	469,612	2,438
1	0,07	461,935	15,909
2	0,2485	452,635	15,500
3	0,2194	439,736	14,955
4	0,1872	428,993	16,485
5	0,1227	416,215	12,706
6	0,0878	403,214	13,741
7	0,0437	392,355	16,162

Tabelle 2.2: Übergangsstärken e_i , Zentralfrequenzen ν_i und Linienbreiten w_i extrahiert aus der Anpassung des Spektrums eines einzelnen NV-Zentrums mit 8 Lorentzkurven.

Die Zerfallsraten R_i aus dem Seitenband in den Resonator sind stets limitiert durch schnelle phononische Relaxationen $\gamma_{i,i-1} \gg \gamma^*$. Dagegen ist R_0 nur durch die Dephasierungsrate γ^* und damit durch die Linienbreite der ZPL limitiert. Die ZPL-Linienbreite von Festkörperemittern lässt sich im Allgemeinen durch Experimente bei kryogenen Temperaturen verringern. Damit wird ein deutlich schnellerer Zerfall in die Resonator-mode mit einer Rate von

$$\tau_{\text{res}}^{-1} = \gamma_{\text{res}} = \gamma + R_0(\gamma^*) + \sum_{j=1}^n R_j \quad (2.90)$$

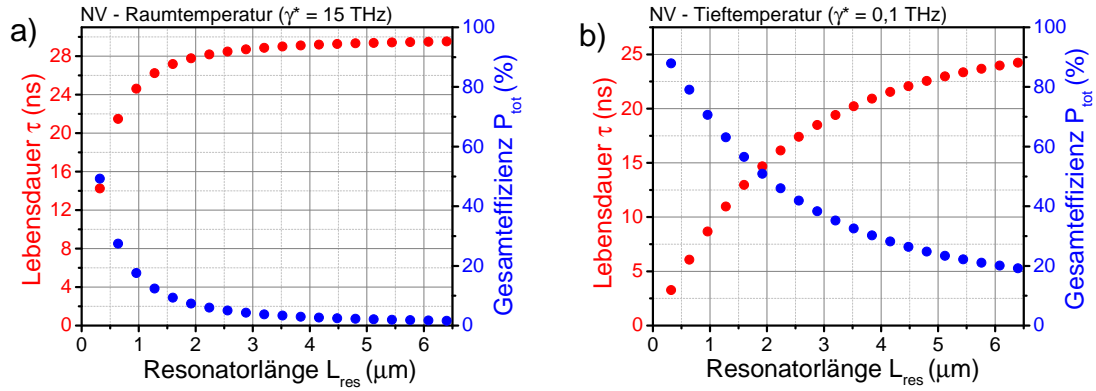


Abbildung 2.9: Berechnung der theoretischen Gesamtkopplungseffizienz P_{tot} der aus einem einzelnen NV-Zentrum (vgl. Abb. 2.8) emittierten Photonen an die Grundmode eines Mikroresonators (blau) und der Lebensdauer des angeregten Zustandes τ (rot) für verschiedene Resonatorlängen bei a) Raumtemperatur ($\gamma^* = 15$ THz) und b) kryogenen Temperaturen ($\gamma^* = 100$ GHz).

ermöglicht. Dieser schnellere Zerfall des angeregten Zustandes entspricht effektiv einem Purcell-Effekt, wie er in Abschnitt 2.3 vorgestellt wurde.

Im Folgenden sollen Vorhersagen über Kopplungseffizienzen und zu erwartende Purcell-Faktoren sowohl für NV-Zentren als auch für Quantenemitter in hexagonalem Bornitrid mit Hilfe des hier vorgestellten Modells getroffen werden und die Resultate miteinander verglichen werden:

In Abbildung 2.9 ist für ein typisches NV-Zentrum für verschiedene Resonatorlängen sowohl die Gesamtkopplungseffizienz an die Resonatormode als auch die Lebensdauer des angeregten Zustandes gemäß den Gleichungen 2.89 und 2.90 auf Resonanz mit der ZPL dargestellt. Für den Resonator sind typische Parameter der in dieser Arbeit produzierten Spiegel angenommen.

- Finesse: $\mathcal{F}=4000$
- Krümmungsradius gekrümmter Spiegel: $R = 15 \mu\text{m}$

Außerdem gilt:

$$g_i = \sqrt{e_i} \cdot g_0 = \sqrt{e_i} \cdot \left(\frac{3c\lambda_0^2\gamma_0}{8\pi V_{\text{mod}}} \right)^{1/2} \quad (2.91)$$

mit

$$V_{\text{mod}} = \frac{\pi}{4} \omega_0^2 \cdot L \quad \text{und} \quad \omega_0 = \left(\frac{\lambda_0 L_{\text{Res}}}{\pi} \cdot \sqrt{\frac{|R|}{L_{\text{Res}}} - 1} \right)^{1/2} \quad (2.92)$$

Alle verwendeten Linienstärken e_i , Zentralfrequenzen ν_i aller Übergänge und deren Linienbreiten sind in Tabelle 2.2 angegeben. Es gilt

$$2\pi\Delta\nu_0 = \gamma + \gamma^* \approx \gamma^* \quad (2.93)$$

$$2\pi\Delta\nu_i = \gamma + \gamma_{i,i-1} + \gamma^* \approx \gamma_{i,i-1} + \gamma^* \quad (2.94)$$

In Abbildung 2.9 ist zu erkennen, dass die Gesamtkopplungseffizienz an die Resonatormode erst für sehr geringe Spiegelabstände im Bereich unterhalb von $1 \mu\text{m}$ signifikant ansteigt. Ebenso wird erst für diese Spiegelabstände eine signifikante Reduktion der Lebensdauer des angeregten Zustand sichtbar.

Diese geringen Spiegelabstände sind mit den in dieser Arbeit produzierten Bragg-Spiegeln nicht zu erreichen. Dies hat zweierlei Gründe: Zum einen besitzen die in die Faserfacette geschriebenen gekrümmten Mikrospiegel endliche Tiefen im Bereich zwischen $0,5\text{-}1 \mu\text{m}$, zum anderen tritt die Resonatormode stets in die Bragg-Spiegel ein, was den effektiven Spiegelabstand vergrößert (vgl. Abschnitt 3). Eindringen in die Spiegelschichten und extrem kleine Spiegelabstände können unter Verwendung von Silberspiegeln erreicht werden [156]. Eine Verbesserung dieser Resultate lässt sich erreichen, indem die Dephasierungsrate γ^* , und damit die Linienbreite der Null-Phononen Linie reduziert wird. Dies erfordert vergleichsweise aufwendige Experimente bei kryogenen Temperaturen. Aufgrund von hauptsächlich spektraler Diffusion ist es sehr herausfordernd,

i	Emitter 9			Emitter 10		
	e_i	ν_i [THz]	w_i [THz]	e_i	ν_i [THz]	w_i [THz]
0	0,1833	428,452	1,059	0,2073	480,452	1,324
1	0,5190	426,162	9,371	0,3466	477,407	10,157
2	0,1286	389,629	3,884	0,2176	440,645	4,365
3	0,1690	383,553	13,789	0,2285	432,507	7,825

Tabelle 2.3: Übergangsstärken e_i , Zentralfrequenzen ν_i und Linienbreiten w_i extrahiert aus der Anpassung der Spektren zweier typischer hBN Quantenemitter (vgl. Abbildung 4.4).

insbesondere lebensdauerlimitierte Linienbreiten in einzelnen NV-Zentren zu messen. In Abbildung 2.9d) ist unter ansonsten gleichen Parametern wie zuvor für eine Dephasierungsrate von $\gamma^*=100$ GHz Gesamteinkopplung und Lebensdauer für verschiedenen Resonatorlängen gezeigt. Aufgrund der nun um etwa zwei Größenordnung verringerten Linienbreite steigt die Einkopplung in den Resonator um etwa eine Größenordnung und bereits bei vergleichsweise leicht zu erreichenden Spiegelabständen von $L_{\text{res}}=3\text{ }\mu\text{m}$ können bereits etwa 40% aller emittierten Photonen an die Resonatormode gekoppelt werden und die Lebensdauer um etwa $1/3$ von 30 ns auf 20 ns herabgesetzt werden.

Wie bereits erwähnt sind Resonatorkopplungsexperimente bei kryogenen Temperaturen verhältnismäßig anspruchsvoll. Ein alternativer Ansatz bereits bei Raumtemperatur hohe Kopplungseffizienzen und Purcell-Faktoren zu erhalten ist die Kopplung von Emittern, die bereits bei Raumtemperatur schmalbandigere ZPL-Emission mit geringeren Huang-Rhys-Faktoren zeigen. Eine solche Klasse Emittter stellen beispielsweise Silizium-Fehlstelle Zentren in Diamant [20, 133, 157, 158] oder neuartige Quantenemitter in Multilagen und Monolagen hexagonalen Bornitrids dar [64–72]. In Abbildung 2.10 sind analog zu oben sowohl die Gesamteinkopplungseffizienz P_{tot} in den Resonator als auch die Lebensdauern der angeregten Zustände für verschiedene Resonatorlängen unter Verwendung des gleichen Modells aber angewendet auf typische Quantenemitter in hexagonalem Bornitrid dargestellt. Die in den Berechnungen benötigten Linienstärken e_i , Linienpositionen ν_i und Linienbreiten w_i sind in Tabelle 2.3 gelistet und typischen Emittern durch Anpassung der Spektren entnommen (vgl. Abb. 4.4). Im Gegensatz zum NV-Zentrum lassen sich in diesen Spektren maximal drei Phononen-Seitenbänder identifizieren. Außerdem ist der Anteil der in die ZPL emittierten Photonen mit 18-20% etwa 9 mal höher als zuvor.

Dies führt unmittelbar zu einer deutlich höheren Emitter-Resonator-Kopplungskonstanten g_0 (vgl. Gleichung 2.50). In Verbindung mit der etwa halb so breiten Null-Phononen Linie der hBN-Emitter verglichen mit der des NV-Zentrums erhält man in diesem Fall bei Resonatorlängen von etwa $3\text{ }\mu\text{m}$ bereits bei Raumtemperatur Gesamtkopplungseffizienzen an den Resonator von etwa 40%. Ebenso sind bereits bei Raumtemperatur bei ansonsten gleichen Resonatorparametern und optimalen Bedingungen bereits

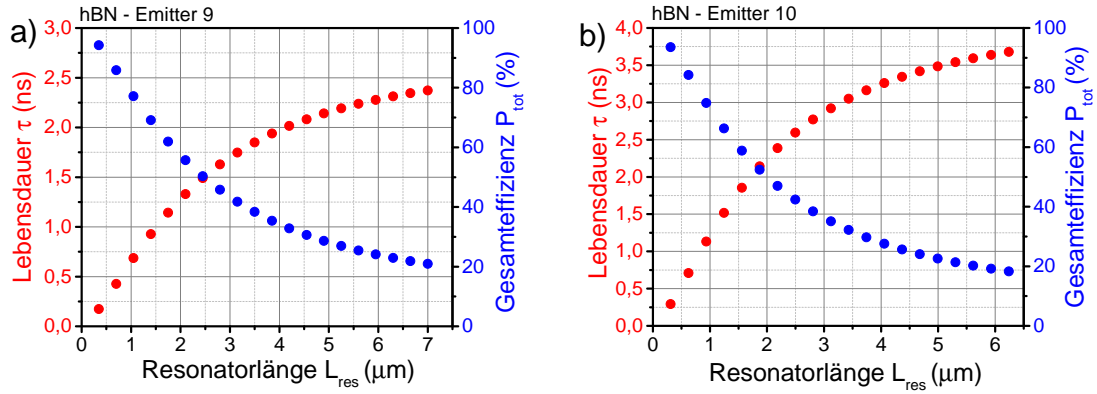


Abbildung 2.10: Berechnung der theoretischen Gesamtkopplungseffizienz P_{tot} der aus zwei verschiedenen typischen Quantenemittern in hBN (vgl. Abb. 2.8) emittierten Photonen in die Grundmode eines Mikroresonators (blau) und der Lebensdauer des angeregten Zustandes τ (rot) für verschiedene Resonatorlängen bei Raumtemperatur.

Purcell-Faktoren von etwa $F_p=2$ erreichbar. Die natürlicherweise bereits um einen Faktor von etwa 8-10 geringere Lebensdauer des angeregten Zustandes der hBN Emitter verglichen mit dem NV-Zentrum spiegelt sich auch in der typischen Zählrate der Emitter wieder. Sättigungszählraten von NV-Zentren in Nanodimanten betragen etwa 200-300 kcts/s, während solche von hBN Emitttern typischerweise im Bereich 1-3 Mcts/s liegen. Dies legt den Schluss nahe, dass die Quanteneffizienz dieser Emitter in der gleichen Größenordnung wie die Quanteneffizienz einzelner NV-Zentren liegt. Dies stellt einen klaren Vorteil in der Verwendung dieser Klasse von Emitttern gegenüber beispielsweise Silizium-Fehlstelle Zentren in Diamant dar. Zwar besitzen diese vergleichbare ZPL-Linienbreiten und Lebensdauern der angeregten Zustände. Jedoch liegen die Zählraten mit 10-100 kcts in einem Bereich, der auf eine geringe Quanteneffizienz schließen lässt. Tatsächlich wurde diese bereits in früheren Experimenten auf etwa 5% bestimmt [159]. Zur Realisierung einer tatsächlich hocheffizienten, schnellen und schmalbandigen Einzelphotonenquelle bei Raumtemperatur sind die hier diskutierten Emitter in hexagonalem Bornitrid gegenüber beiden erwähnten Farbzentren in Diamant demnach deutlich zu bevorzugen.

2.5 Resonatoren und Kopplungsexperimente

Die Kopplungsstärke zwischen Festkörperemittern und der Grundmode eines optischen Resonators skaliert reziprok mit dem Modenvolumen des Resonators (siehe Abschnitt 2.4). In den letzten Jahren wurden zahlreiche Realisierungen solcher Mikroresonatoren vorgestellt. Dazu gehören sowohl klassische Fabry-Perot Resonatoren als auch photonische Kristallresonatoren [160]. Die folgenden beiden Abschnitte sollen sowohl einen Überblick über Herstellung und bereits entwickelte Fabry-Perot Mikroresonatoren geben und bislang erreichte Resultate in der Kopplung von Quantenemittern in Festkörpersystemen, insbesondere Stickstoff-Fehlstellen-Zentren und Silizium-Fehlstellen-Zentren in Diamant zusammenfassen.

2.5.1 Fabry-Perot Mikroresonatoren

2005 präsentierten Trupke et al einen Mikroresonator bestehend aus einem ebenen Spiegel, der auf die Endfacette einer optischen Faser transferiert wurde und einem gekrümmten Spiegel in einem Siliziumsubstrat [161]. Der gekrümmte Spiegel wurde produziert durch Ätzen des Siliziums durch eine Apertur. Dies erlaubte Oberflächenrauigkeiten von etwa 6 nm rms und Resonatorlängen zwischen 20 μm und 200 μm .

Steinmetz et al übertrugen Mikrospiegel von einer konvex gekrümmten Oberfläche und die Endfacetten optischer Fasern und konnten auf diese Art einen Fabry-Perot Resonator mit einem Modenvolumen von etwa 600 μm^3 (ca. $2300\lambda^3$ bei 637 nm) realisieren. Sie messen eine Oberflächenrauigkeit ihrer Spiegel von 1,7 nm rms. Durch diese Rauigkeit werden Streuverluste im Resonator induziert, die die Finesse limitieren. Durch eine Abschätzung errechnen sie eine minimale Rauigkeit von 0,7 nm rms, die die Spiegel aufweisen müssten, um eine Atomwolke aus Rubidium Atomen stark an den Resonator zu koppeln. Eine solche Rauigkeit erreichen Dolan et al mit Hilfe eines fokussierten Strahls aus Gallium Ionen [162, 163]. Sie schreiben ein Raster aus Mikrospiegeln (Krümmungsradien 5 μm bis 25 μm) in ein planes Quarzsubstrat, nutzen im Unterschied zu den vorangegangenen Experimenten als zweiten Spiegel keinen Faser, sondern ein zweites, planes Quarzsubstrat. Auf diese Weise können sie in kurzer Zeit beliebig viele Resonatoren realisieren. Mit diesen Parametern und Resonatorlängen zwischen 2-4 μm erreichen sie Modenvolumina bis zu 2,2 μm^3 (ca. $9\lambda^3$ bei 637 nm).

Ein weiterer Ansatz der Produktion konkaver Mikrospiegel besteht in der Strukturierung der Oberfläche mit Hilfe von CO_2 -Laserpulsen [152, 164, 165]. Sie arbeiten in einem Regime, in dem die Vertiefung in der Oberfläche durch Verdampfen des Materials erzeugt wird, während Schmelzprozesse lediglich auf eine dünne Schicht begrenzt ist und die Oberfläche glättet. Dies erlaubt Strukturiefen zwischen $z=0,01..4 \mu\text{m}$ mit Durchmessern zwischen $D=10..60 \mu\text{m}$, was in Krümmungsradien zwischen $R=20..2000 \mu\text{m}$ resultiert. Die Oberflächenrauigkeit der Vertiefungen liegt mit ca 0,2 nm rms in Übereinstimmung mit den durch den fokussierten Ionenstrahl erzeugten Strukturen [162]. Auf diese Art war es ihnen möglich, durch entsprechende Spiegelbeschichtungen Resonatoren mit Finesse bis zu $\mathcal{F} = 100000$ zu realisieren [152].

2.5.2 Kopplung an Fabry-Perot Mikroresonatoren

Die Kopplung eines einzelnen NV-Zentrums in einem Nanodiamanten an einen faserbasierten Mikroresonator bei Raumtemperatur gelang zum ersten mal im Jahr 2013 [45]. Hierbei bestand der Resonator aus einem Planspiegel und einem Mikrospiegel, der mit Hilfe der oben beschriebenen CO₂-Laser Fabrikationstechnik in die Facette einer optischen Glasfaser geschrieben wurde ($z=1,9\text{ }\mu\text{m}$, $D=20,6\text{ }\mu\text{m}$, $R=71,6\text{ }\mu\text{m}$). Die Nanodiamanten wurden auf den Spiegel gespincoated. Dies erlaubte die Untersuchung der NV Zentren sowohl im freien Raum, um Informationen über die volle Abstrahlung zu gewinnen, als auch im gekoppelten Fall. Das Hauptresultat lag in der Erhöhung der spektralen und räumlichen Emission in die Mode des Resonators (17 Photonen/s/GHz) im Vergleich zum ungekoppelten Fall ($\approx 4,5$ Photonen/s/GHz), wenn sich der Resonator auf Resonanz mit dem Null-Phononen Übergang des NV-Zentrums befindet ($V_{\text{mod}} \approx 34\lambda^3$ @ 637 nm, $\mathcal{F}=3600$). Dies liegt in exzellenter Übereinstimmung mit einem Mastergleichungsmodell, das auf dem Prinzip eines Resonator-Fütterungsprozesses durch einen Prozess der reinen Dephasierung beruht [47, 48, 154] (für ausführliche Behandlung siehe Kapitel 2.4). Kurz darauf konnte ebenso die Kopplung eines vorselektierten NV-Zentrums an einen rein faserbasierten Resonator gezeigt werden. Der Nanodiamant wurde hierzu mittels der Spitze eines Rasterkraftmikroskops auf einem der Mikrospiegel abgelegt [46, 166]. In beiden Experimenten herrschte eine Asymmetrie zwischen den Beschichtungen der jeweils verwendeten Spiegel. Insbesondere in [45] war die Reflektivität des Faserspiegels etwa eine Größenordnung geringer als die des Planspiegels. Daher diente der Faserspiegel als Hauptauskoppelkanal der Emission aus dem Resonator. Dies bietet den Vorteil, dass die Photonen direkt zu anschließenden Experimenten zur Verfügung stehen. Außerdem konnte in beiden Experimenten kein Übergang in ein Purcell überhöhtes Regime gemessen werden. Grund hierfür ist die bei Raumtemperatur sehr breite Null-Phononen Linie des NV Zentrums (vgl. Kapitel 2.4).

Eine Verringerung der ZPL Linienbreite lässt sich durch Experimente bei kryogenen Temperaturen erreichen. Johnson et al konstruierten einen Aufbau zur Resonatorkopplung eines einzelnen NV Zentrums in einem Nanodiamant bei 77 K in einem flüssig Stickstoff Bad-Kryostaten. Sie verwendeten die in [162, 163] entwickelte Methoden zur Strukturierung ihrer gekrümmten Spiegel ($R=7,6\text{ }\mu\text{m}$) und erreichen Modenvolumina bis zu $2,2\text{ }\mu\text{m}^3$ ($2,8\lambda^3$ bei 637 nm). Bei 77 K messen sie eine Gaußförmige Null-Phononen-Linie von 0,4 nm (ca. 500 GHz). Dieser Wert ist einige Größenordnung größer als das Lebensdauerlimit von 30 MHz in Nanodiamanten. Hauptgrund für diese Verbreiterung ist spektrale Diffusion in der Umgebung des NV-Zentrums [129]. Dennoch erreichen sie eine Verringerung der Lebensdauer des angeregten Zustand um etwa 40 % von 30,8 ns auf 22,1 ns ($F_P = 1,4$).

Eine weitere Verbesserung erreichen Riedel et al mit der Verwendung von [52] aus hochreinem Diamantmaterial ausgeschnittenen Membranen aus hochreinem (Dicke ca $1\text{ }\mu\text{m}$, Fläche: $20\times 20\text{ }\mu\text{m}^2$) Diamantmaterial (Element 6, (100)-Orientierung), in dem bereits bei flüssig Helium Temperaturen Linienbreiten <100 MHz gemessen wurden. Sie transferieren die Membran auf einen DBR-Spiegel und messen nach den Prozes-

sierungsschritten ZPL-Linienbreiten von 1 GHz. Durch Kopplung dieser NV Zentren an Mikroresonatoren ($R=16\text{ }\mu\text{m}$, $L<2\text{ }\mu\text{m}$, $\mathcal{F} \approx 5000$) sehen sie eine Modifizierung der spontanen Zerfallsrate um $F_P=2$. Für die Null-Phononen Linie entspricht dies einem Purcell Faktor von $F_P^{\text{ZPL}} \approx 30$. Dies entspricht einer Erhöhung der Emission in die Null Phononen Linie von 3% auf 46%.

Allerdings konnten auch in Raumtemperaturexperimenten Lebensdaueränderungen in den angeregten Zuständen von NV Zentren durch Resonatorkopplung demonstriert werden [156]. Hauptvoraussetzung sind Resonatorlängen im Bereich einer halben Resonanzwellenlänge. Dies erreichen Kaupp et al zum einen durch Strukturiefen ihrer gekrümmten Spiegel von $<100\text{ nm}$ und zum anderen durch die Verwendung von Metallspiegeln anstelle dielektrischer Spiegel, wie sie in allen oben bereits vorgestellten Experimenten verwendet wurden. Zwar werden durch dielektrische Spiegel höhere Reflektivitäten erreicht, jedoch dringt die Resonatormode stets in die Spiegelschichten ein und vergrößert so die effektive Resonatorlänge. Dies ist bei metallischen Spiegeln nicht der Fall und die Resonatorlänge ist lediglich durch die Tiefe des gekrümmten Spiegels und den Abstand der beiden Spiegel gegeben. Mittels eines solchen Resonators ($\mathcal{F} \approx 40$) erreichen sie eine Lebensdauerreduzierung eines einzelnen NV Zentrums von einer geschätzten Lebensdauer von $\tau_0=20\text{ ns}$ auf $\tau_1=11\text{ ns}$ ($L_{\text{res}}=2\text{ }\mu\text{m}$) und $\tau_1=7\text{ ns}$ ($L_{\text{res}}=345\text{ nm}$). Gemittelt über mehrere NV-Zentren beobachten sie darüberhinaus eine Erhöhung der gemessenen Sättigungszahlrate einzelner NV-Zentren im Resonator ($L_{\text{res}} = 1,1\text{ }\mu\text{m}$) verglichen mit der Abstrahlung in den freien Raum um einen Faktor von 3,8 von $K = 1,5 \cdot 10^5\text{ s}^{-1}$ auf $K_{\text{Res}} = 5,7 \cdot 10^5\text{ s}^{-1}$.

Neben den bereits vorgestellten Experimenten sind weitere Vorarbeiten zur Kopplung einzelner NV Zentren an Mikroresonatoren geleistet worden. Janitz et al arbeiten ebenfalls mit NV Zentren in Membranen (Dicke $> 10\text{ }\mu\text{m}$) [167]. Während der reine Resonator eine Finesse von $\mathcal{F} \approx 37000$ besitzt, reduziert diese sich bei inkorporierter Membran aufgrund von Streuverlusten um einen Faktor von etwa 2 auf $\mathcal{F} \approx 17000$. Während dieser Resonator für Raumtemperaturexperimente konstruiert ist, konstruieren Bogdanovic et al einen entsprechenden Aufbau für Experimente bei kryogenen Temperaturen [168]. Ihr Design erlaubt eine Resonatorfinesse von $\mathcal{F} \approx 12000$ und eine Längenstabilität $<0,46\text{ nm}$.

Die hier vorgestellten Experimente stellen große Durchbrüche in der Überhöhung kohärenter Photonenemission aus einzelnen Stickstoff-Fehlstellen in Diamant dar. Ihre bislang wichtigste Anwendung werden sie in Zukunft in der Verbesserung bereits gezeigter Verschränkungsschemata basierend aus Zwei-Photonen Interferenz aus zwei räumlich getrennten NV-Zentren erhalten [35, 169].

Darüber hinaus nutzen Trichet et al Mikroresonatoren zur Materialbestimmung von Nanopartikeln, die durch den Mikroresonator hindurch diffundieren [170]. Über Verschiebung der Resonanzwellenlänge ist es ihnen möglich, Informationen über die Polarisierbarkeit und den Brechungsindex von Nanopartikeln zu gewinnen. Ein großer Schritt in die Anwendung optischer Mikroresonatoren zur Entwicklung von Nanopartikelsensoren und Chip-basierten Technologien.

Neben Kopplungsexperimenten mit Farbzentren in Diamant konnte auch die Kopplung

von Emission aus Halbleiter Quantenpunkten an faserbasierte Mikroresonatoren mit Purcell-Faktoren von etwa $F_P=4,5$ demonstriert werden [171,172]. Erst kürzlich konnte so mit Hilfe von Indium-Gallium-Arsenid Quantenpunkten eine direkt fasergekoppelte Quelle einzelner Photonen mit 90% Ununterscheidbarkeit gezeigt werden [173].

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

Dieses Kapitel behandelt die Beschreibung der experimentellen Methoden dieser Arbeit. Spektroskopische Untersuchungen werden in einem Laser-Scanning Konfokalmikroskop durchgeführt. Dieses wird in Abschnitt 3.1 im Detail vorgestellt. Ein Hauptziel dieser Arbeit ist die Kopplung eines Quantenemitters in hBN an einen fasergekoppelten Mikroresonator. Abschnitt 3.2 widmet sich der im Laufe der Arbeit zu diesem Zweck produzierten Mikrospiegel und beschreibt die Methodik, die eine quantifizierbare Beschreibung von Resonatoreffekten auf ausgewählte Emitters erlaubt. Abschnitt 2.4 behandelte bereits die theoretische Beschreibung eines breitbandigen Emitters gekoppelt an einen Mikroresonator. In diesem Kapitel wurden Vorhersagen getroffen, die eine signifikante Überhöhung der Abstrahlung und den Übergang in ein Purcell-Regime vorhersagen, wenn die Kopplungsexperimente bei kryogenen Temperaturen stattfinden. Zu diesem Zweck wurde in der Arbeit ein pulsröhrengetriebener closed cycle Helium Kryostat installiert und in Betrieb genommen. Da im Rahmen dieser Arbeit auf Resonatorexperimente innerhalb des Kryostats nicht weiter eingegangen wird, befindet sich eine Einführung und eine Anleitung zur Inbetriebnahme des Kryostats in Anhang A.

3.1 Konfokalmikroskop

Spektroskopische Untersuchungen an den in dieser Arbeit verwendeten Proben erfolgten an einem selbst gebauten Laser-Scanning Konfokalmikroskop. Dieses ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt.

Als Anregungslaser dient ein diodengepumpter Festkörperlaser (*Linos, Nano 532-100, Max. Power: ca. 35mW*), der eine kontinuierliche Anregung bei 532 nm erlaubt. Um das Strahlprofil zu bereinigen, wird der Anregungslaser zunächst in eine Einmodenfaser eingekoppelt. Ein Laserlinienfilter bei 532 nm unterdrückt etwaige Fluoreszenz, die innerhalb der Einmodenfasern durch den Anregungslaser erzeugt wird. Mit Hilfe zweier Wellenverzögerungsplatten und einem polarisierenden Strahlteiler lassen sich Anregungsleistung und Anregungspolarisation regulieren, bevor das Anregungslicht durch

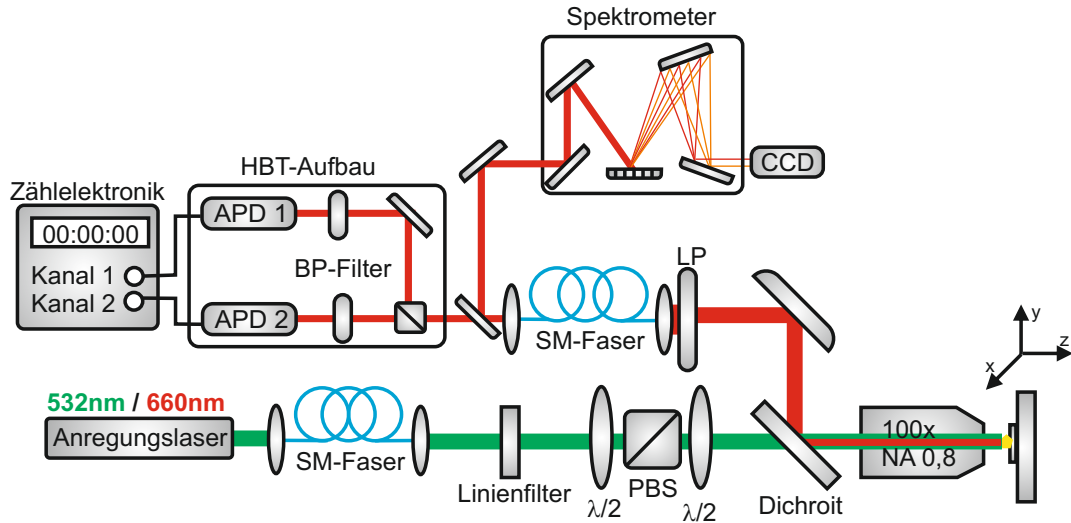


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des konfokalen Mikroskops zur Untersuchung von Quantenemittern in Festkörpersystemen bei Raumtemperatur. Details im Text.

ein Objektiv (*Olympus, LMPlanFL N 100x NA=0,8*) auf die Probe fokussiert wird. Diese Probe ist in allen drei Raumrichtungen über motorisierte Verschiebetische (*Newport, M-VP-25XL*) beweglich, um den Anregungslaser optimal auf die Probe zu fokussieren und die Probe relativ zum Fokuspunkt abzurastern. Fluoreszenzlicht aus Emittern, die sich während des Abrasterns der Probe durch den Fokuspunkt bewegen, wird über das gleiche Objektiv gesammelt. Mit Hilfe eines dichroitischen Spiegel (DLRP 545) und eines Langpassfilters (600LP) werden Anregungslicht und Fluoreszenzlicht voneinander getrennt und in eine weitere Einmodenfaser (SM 600) mit einem Kerndurchmesser von $4,3\,\mu\text{m}$ eingekoppelt, die im konfokalen Mikroskop als Lochblende dient. Die spektrale Analyse des Fluoreszenzlichts geschieht mit Hilfe eines Gitterspektrometers (*Princeton Instruments, Acton Research SP 2500*) über eine flüssig-Stickstoff gekühlte CCD Kamera (*Princeton Instruments, Spec-10*). Für Raumtemperatur Experimente wird ein Gitter mit 600 Strichen/mm verwendet, wodurch die Detektion durch eine Auflösung von etwa $0,1\,\text{nm}$ begrenzt ist. Diese Auflösung ist ausreichend, da Raumtemperaturlinienbreiten aller untersuchter Emitter deutlich oberhalb dieser Auflösungsgrenze liegen. Die Untersuchung der Photonenzählrate und der Photonenstatistik der untersuchten Proben erfolgt über zwei siliziumbasierte Einzelphotonendetektoren (APD) (*PicoQuant, τ -SPAD-100*, Totzeit $<70\,\text{ns}$ / *Perkin Elmer, SPCM AQRH-14*) in Hanbury-Brown and Twiss Konfiguration (vgl.3.3). Die Quanteneffizienzen dieser Detektoren liegen im für uns relevanten Wellenlängenbereich zwischen 600 und 800 nm bei 60 % - 70 %. Dunkelzählraten liegen typischerweise unter 100 bzw. 200 Ereignissen pro Sekunde für die verwendeten Detektoren. Da die APDs bei der Detektion nicht zwischen unterschiedlichen Wellenlängen unterscheiden können, werden im Experiment schmalbandige Bandpassfilter zur Selektion der gewünschten Wellenlängen verwendet. Zum Ab-

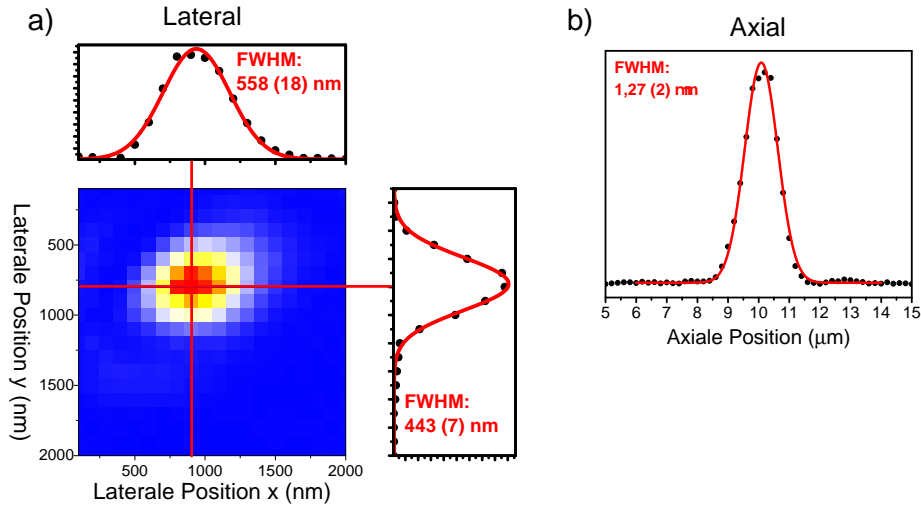


Abbildung 3.2: Räumliche Auflösung des konfokalen Mikroskops. a) Fluoreszenz-Karte eines einzelnen hBN Emitters in einem Multilagen-Flocken hBN mit Schnitten in beiden Richtungen durch das Maximum des lateralen Intensitätsprofils (Punktspreizfunktion). Gaußförmige Anpassungen liefern Halbwertsbreiten von 443 nm und 558 nm. b) Die axiale Auflösung des Konfokalmikroskops beträgt 1,27 μm

schluss dieses Abschnitts soll noch auf die räumliche Auflösung des konfokalen Mikroskops eingegangen werden. Hierzu nehmen wir einen lokalisierten Quantenemitter in hBN als punktförmigen Emitter an. Abbildung 3.2a) zeigt eine laterale Abrasterung dieses Emitters, sowie Schnitte in beiden Richtungen durch das Maximum des Intensitätsprofils (Punktspreizfunktion). Gaußförmige Anpassungen an das Intensitätsprofil in x-(y-)Richtung liefern Halbwertsbreiten von 440 nm (560 nm). Emitter, die sich in diesen Abständen voneinander befinden können demnach getrennt voneinander adressiert werden. Die axiale Auflösung des Mikroskops wird durch Messung der Zählrate des Punktemitters in Abb. 3.2a) in unterschiedlichen Fokustiefen bestimmt (vgl. Abb. 3.2b). Es ergibt sich eine axiale Auflösung von etwa 1,3 μm .

3.2 Fasergekoppelter Mikroresonator

Dieser Abschnitt behandelt die einzelnen Schritte zur quantifizierbaren Kopplung von Emittern an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Dabei werden wir wie folgt vorgehen:

- Produktion der parabolischen Strukturen in die Faserfacetten
- Spiegelbeschichtungen für Faser- und Planspiegel
- Aufbau zur Suche nach geeigneten Emittern zur Kopplung an Mikroresonatoren.

- Umbau zu einem fasergekoppelten Mikroresonator und Kopplung der voruntersuchten Emittter.

Produktion der parabolischen Strukturen in die Faserfacetten

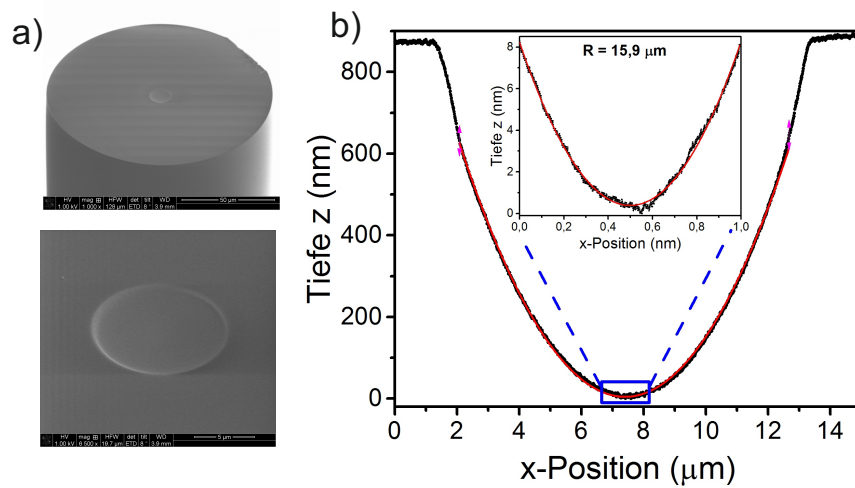


Abbildung 3.3: a) Rasterelektronenmikroskop Aufnahme eines Mikrospiegels ($D=11\text{ }\mu\text{m}$) auf der Facette einer optischen Glasfaser ($D=120\text{ }\mu\text{m}$) produziert durch einen fokussierten Ionen Strahl aus Ga^+ -Ionen. b) Schnitt durch einen Rasterkraftmikroskop-Scan über die Faserfacette durch den tiefsten Punkt der Parabel. Ein parabolischer Fit liefert einen Krümmungsradius von $15,9\text{ }\mu\text{m}$. Der Einsatz ist ein detaillierter Scan im Minimum der Struktur mit einer Auflösung von $0,5\text{ nm}$ pro Pixel. Die Rauigkeit der Struktur ist $<0,2\text{ nm rms}$. Diese Resultate liegen in sehr guter Übereinstimmung mit Strukturen, die bereits früher in ein anderes Set von Fasern geschrieben wurden [45].

Wir produzieren die parabolischen Mikrospiegel mittels eines fokussierten Ionen-Strahls aus Gallium-Ionen, welche besonders glatte Strukturen mit einer Rauigkeit $<0,2\text{ nm rms}$ erlaubt. Die produzierten Strukturen besitzen Durchmesser von $D=10\text{ }\mu\text{m}$ und Tiefen zwischen $z=0,5\text{ }\mu\text{m}$ - $1\text{ }\mu\text{m}$, wodurch sich Krümmungsradien zwischen $\text{ROC}=10\text{ }\mu\text{m}$ - $15\text{ }\mu\text{m}$ ergeben. Abbildung 3.3a) zeigt beispielhaft eine Rasterelektronenmikroskop Aufnahme einer solchen Struktur. Die vollständige Faserfacette besitzt einen Durchmesser von $D=120\text{ }\mu\text{m}$, während die Mikrostruktur in der Mitte lediglich einen Durchmesser von $D=11\text{ }\mu\text{m}$ aufweist. Für diese Struktur wurde eine nominelle Tiefe von $z=1\text{ }\mu\text{m}$ und ein Krümmungsradius in der Mitte der Struktur von $\text{ROC}=15\text{ }\mu\text{m}$ gewählt. Der Nachweis, dass der angestrebte Krümmungsradius in der Mitte der Struktur tatsächlich erreicht wurde, erfolgte über eine Vermessung der Struktur in einem Rasterkraftmikroskop (Abbildung 3.3b). Gezeigt ist ein Schnitt entlang einer Achse durch den tiefsten Punkt der Parabel. Ein polynomieller Fit zweiter Ordnung liefert einen Krümmungsradius von

$ROC=15,9\text{ }\mu\text{m}$, in guter Übereinstimmung mit dem angestrebten Wert. Der Einsatz in Abbildung 3.3b) ist ein detaillierter Scan im Minimum der Parabel mit einer Schrittweite von etwa $0,5\text{ nm}$.

Spiegelbeschichtungen für Faser- und Planspiegel

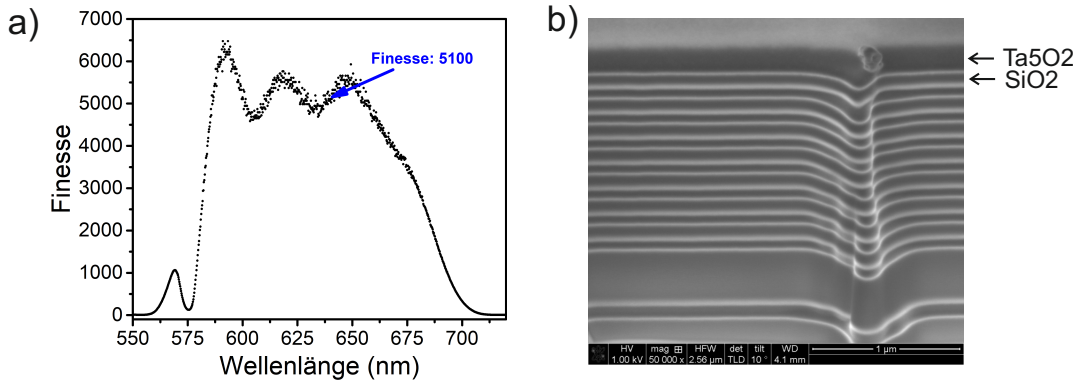


Abbildung 3.4: a) Aus den Transmissionskurven berechnete Finesse der Resonatoren. Die Werte an den Positionen der Null-Phononen-Linien ($\mathcal{F}(640\text{ nm})=5100$) liegen unterhalb der theoretischen Werte aus Tabelle 1. Ursache hierfür ist eine nicht optimale Ausrichtung des Substrates im Photospektrometer relativ zum Referenzstrahl. b) REM Aufnahme eines Schnitts durch einen Faserspigel. Deutlich sind die einzelnen Lagen der dielektrischen Materialien zu erkennen. Der Spiegel schließt nach oben hin mit dem Material mit dem höheren Brechungsindex (hier Ta_2O_5) ab. Der Schnitt erfolgte mit einem fokussierten Strahl aus Gallium-Ionen, auf die gleiche Art, wie die Mikrospiegel in die Faserfacette geschrieben wurden.

Um die hohen Reflektivitäten in ausgewählten Wellenlängenbereichen zu erhalten, wurden in dieser Arbeit Bragg-Spiegel sowohl auf den Facetten der strukturierten Fasern, als auch auf $1/2''$ Plansubstraten realisiert. Hierzu werden Schichten zweier dielektrischer Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes ($n_1 < n_2$) in alternierender Reihenfolge per Ionen-Strahl-Abscheidung (IBS) auf die Substrate aufgetragen. Für Wellenlängen im sichtbaren Bereich werden für gewöhnlich SiO_2 ($n_1=1,455$) und Ta_2O_5 ($n_2=2,041$) verwendet. Die Beschichtung erfolgte über die Firma LASEROPTIK (GmbH). In Abbildung 3.4 ist ein Schnitt durch einen solchen Spiegel gezeigt. Deutlich sind die alternierenden Schichten der beiden dielektrischen Materialien zu erkennen. Der Schnitt erfolgte wie auch die Produktion der Mikrospiegel durch einen fokussierten Gallium-Ionen Strahl. Zur Beschichtung werden die Fasern nach der Strukturierung der Facette in einen Halterblock eingebaut, in dem jeweils 11 Fasern auf 5 übereinander gestapelten Platten Platz finden (Abbildung 3.5). Dieser Halterblock wurde uns von der Arbeitsgruppe von David Hunger an der LMU in München zur Verfügung gestellt. Um eine gleichmäßige Beschichtung der Fasern zu gewährleisten, müssen sich alle Faserfacetten nach dem Einbau in die Beschichtungsanlage in der gleichen Beschichtungsebene

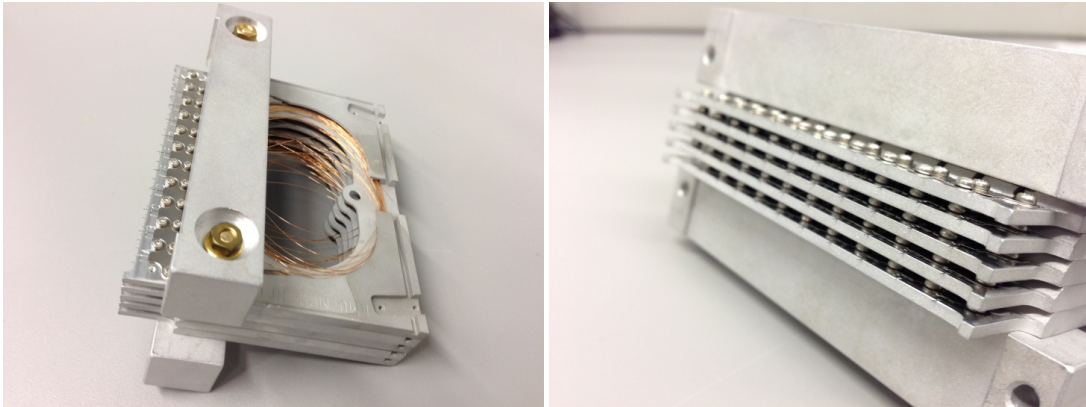


Abbildung 3.5: Foto des zur Beschichtung der strukturierten Faserfacetten genutzten Halterblocks. Eingebaut sind 5 Platten mit jeweils 11 Fasern. Um eine gleichmäßige Beschichtung zu gewährleisten, müssen alle Fasern in einem Abstand von 1 mm über den Rand des Blocks überstehen. Der Einbau jeder einzelnen Faser erfolgt daher unter einem Mikroskop.

befinden. Beim Einbau der Fasern in den Halterblock ist aus diesem Grund darauf zu achten, dass alle Fasern exakt 1 mm über dem Halterblock abstehen. Dies wurde durch den Einbau aller Fasern unter einem Mikroskop sichergestellt.

In dieser Arbeit wurden Faserspiegel und Planspiegel zur Kopplung von Quantenemittern in hexagonalem Bornitrid hergestellt. Für die Beschichtungen sind im Allgemeinen folgende Punkte zu beachten:

- Im Bereich der Null-Phononen-Linie muss der Planspiegel eine um etwa eine Größenordnung höhere Reflektivität aufweisen als der Faserspiegel. Dadurch wird die Faser zum Hauptauskoppelkanal der Photonen im Resonator. Gleichzeitig muss die erforderliche Finesse bei dieser Wellenlänge erreicht werden.
- Der Faserspiegel muss hochreflektierend für die jeweiligen Anregungswellenlängen sein, um mögliche durch den Laser erzeugte Untergrundfluoreszenz in der Faser zu unterdrücken.
- Der Planspiegel soll möglichst transmittiv für die Anregungswellenlängen sein, um effiziente Anregung der Emitter zu gewährleisten.
- Der Planspiegel besitzt eine zusätzliche Abschlussschicht in der Bragg-Schicht, sodass das Feldstärkemaximum im Resonator sich etwa 30-50 nm oberhalb der Spiegeloberfläche befindet. Dadurch soll gewährleistet werden, dass sich das Intensitätsmaximum der Mode in etwa an der Position des Emitters im Wirtsmaterial befindet.

Tabelle 3.1 fasst die Reflektivitäten der relevanten Bereiche zusammen. Zur Überprüfung dieser Werte sind die Transmissionskurven der Spiegel nach der Beschichtung in einem

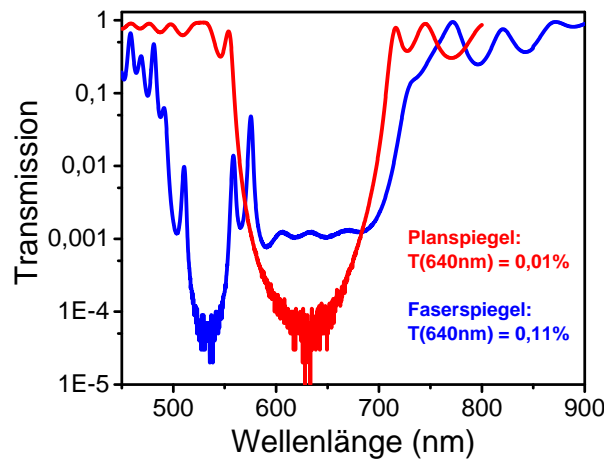


Abbildung 3.6: Mit Photospektrometer gemessene Spiegelreflektivitäten für Planspiegel und Faserspiegel für Experimente mit Defekten in hexagonalem Bornitrid. Die Reflektivitäten der Spiegel sind so gewählt, dass der Faserspiegel als Hauptauskoppelkanal für Fluoreszenz aus dem Resonator dient. Beachte, dass die so gemessenen Reflektivitäten etwas nach unten von den nominellen Werten abweichen. Dies liegt an einer nicht optimalen Ausrichtung des Substrats im Photospektrometer.

Photospektrometers gemessen worden (vgl. Abbildung 3.6). Da diese Messung für die Faserspiegel nicht direkt durchgeführt werden kann, wurden anstelle der Faserspiegel Plansubstrate genutzt, die sich in der selben Beschichtungsladung befanden. Die gemessenen Kurven liegen qualitativ in perfekter Übereinstimmung mit denen von LASEROPTIK gelieferten Simulationskurven für die jeweiligen Beschichtungen (hier nicht gezeigt). Aus diesen Transmissionskurven lässt sich nach Gleichung 2.10 die jeweilige Finesse der Resonatoren für den gesamten Wellenlängenbereich unter der Annahme keiner weiteren Streuverluste berechnen. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Bei $\lambda = 637$ nm liegt der Wert unterhalb des in Tabelle 3.1 berechneten Soll-Wertes. Die Ursache hierfür liegt vermutlich darin, dass im Photospektrometer das Substrat nicht optimal zum Strahl positioniert war. Die Transmission ist für einen Winkel von 0 Grad optimiert. Durch einen größeren Winkel kann sich die Transmission des Referenzstrahls durch das Substrat erhöhen, was in einer geringeren Finesse resultiert.

	Planspiegel	Faserspiegel	Resonatorfinesse
@ 600-680 nm	$R(640 \text{ nm}) \geq 99,99 \%$	$R(640 \text{ nm}) = 99,9 \%$	$\mathcal{F}(637 \text{ nm})=5700$
@ 532 nm	$R(532 \text{ nm}) \leq 95 \%$	$R(532 \text{ nm}) \geq 99,9 \%$	

Tabelle 3.1: Reflektivitäten der Faser- und Planspiegel für Kopplungsexperimente. Angegeben sind die Soll-Reflektivitäten für die relevanten Bereiche der Null-Phononen-Linien und der jeweiligen Anregungswellenlängen. Für einen Resonator ohne zusätzliche Verluste ergeben sich somit für die theoretisch mögliche maximale Finesse an den Null-Phononen-Linien in den beiden Fällen: $\mathcal{F}(637 \text{ nm})=5700$

Selektion geeigneter Emittter

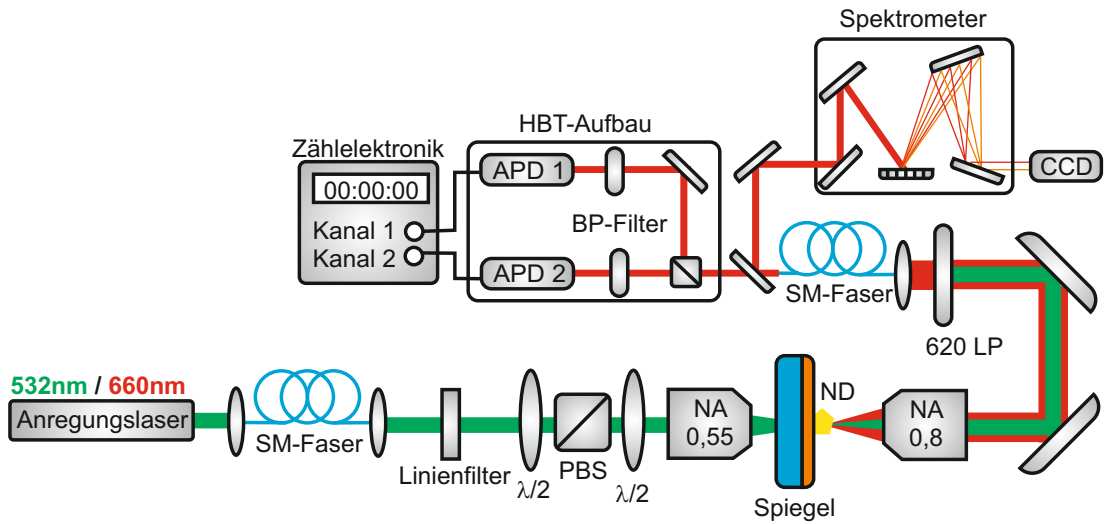


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Voruntersuchung von Quantenemittern in hBN zur späteren Kopplung an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Für Details: Siehe Text.

Zur zuverlässigen Quantifizierung eines Resonatoreffektes auf einen spezifischen Emittter müssen zunächst Informationen über die spektrale Verteilung der Emission des Emitters und Anzahl der emittierten Photonen in den freien Raum gesammelt werden. Dies geschieht, ähnlich wie in oben beschriebenem Konfokalmikroskop, durch Sammeln der Fluoreszenz aus dem Emittter nach einer äußeren Anregung mit Hilfe eines Mikroskopobjektivs. Zu beachten ist, dass die Bezeichnung *freier Raum* eine vereinfachte Bezeichnung darstellt, da bereits der Spiegel aufgrund seiner hohen Reflektivität für die Emissionswellenlängen die Abstrahlung des Emitters beeinflusst. Eine schematische Darstellung des Aufbaus zeigt Abbildung 3.7. Im Unterschied zum normalen Konfokalmikroskop werden hier zwei unterschiedliche Obektive zur Anregung (*Mitu-*

toyo MPlanApo, Vergrößerung 50x, N.A. 0.55, focal length $f = 4\text{ mm}$, Arbeitsabstand 13 mm) und Sammlung (*Olympus, LMPlanFL N 100x NA=0,8*) der Fluoreszenz verwendet. Sowohl Anregungsobjektiv als auch Sammelobjektiv befinden sich auf 3-Achsen Verschiebetischen (Elliot Scientific MDE122). Dies erlaubt es, beide Objektive in der Summe ihrer Arbeitsabstände parallel zueinander zu positionieren. Die Emittoren befinden sich auf der Oberfläche des Planspiegels. Dies bedeutet, dass die Anregung durch die Rückseite des Planspiegels erfolgt. Der Spiegel ist über motorisierte Verschiebetische (*PI Micromove M-110.12S*, 5 mm Verfahrweg, kleinste Schrittweite: $0,05\text{ }\mu\text{m}$) in allen drei Raumrichtungen verfahrbar. So wird die Probe nach geeigneten Emittoren abgerastert. Zwei $\lambda/2$ -Platten und ein polarisierender Strahlteiler werden verwendet, um die Anregungsleistung und die Anregungspolarisation zu variieren. Die Detektion des Fluoreszenzlichtes geschieht mit Hilfe der gleichen Detektionseinheiten (Photonendetektoren und Spektrometer) wie in Abschnitt 3.1. Man beachte, dass die Sättigungsleistung eines einzelnen Emitters in diesem Aufbau im Vergleich zum oben beschriebenen Konfokalmikroskop etwas höher sein wird. Dies hat zwei Ursachen: Zum einen erfolgt die Anregung mit einem Objektiv mit geringerer NA, zum anderen erfährt der Anregungsstrahl beim Durchgang durch das Glassubstrat eine leichte sphärische Abberation. Für alle in dieser Konfiguration untersuchten Emittoren war die Leistung des verwendeten Lasers ausreichend, um die Emittoren in Sättigung zu treiben.

Fasergekoppelter Mikroresonator

Abbildung 3.8 zeigt schematisch den in dieser Arbeit realisierten Aufbau zur Kopplung von Emittoren in Festkörpern an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Hervorgehoben ist der Resonator bestehend aus Planspiegel und Faserspiegel. Beide Spiegel sind in allen drei Raumrichtungen beweglich. Im Anregungsstrahlengang ändert sich im Vergleich zu Abschnitt 3.2 nichts. Das Sammelobjektiv wird durch den Faserspiegel ersetzt, so dass die Fluoreszenz nun direkt durch die Resonatorfaser gesammelt wird. Für den Austausch von Objektiv und Faser ist zu beachten, dass der Anregungsstrahl nach Entnahme des Objektivs aus dem Aufbau nicht mehr nachjustiert werden darf, um die Position auf dem Spiegel nicht zu verlieren. Der Faserspiegel muss mit Hilfe eines 3-Achsen Verschiebetisch (Elliot Scientific MDE122) derart vor dem Planspiegel platziert werden, dass der Anregungslaser bei 532 nm bereits durch die Faser transmittiert wird. Durch die deutlich geringere NA der Faser (NA 0.12) und die hohen Reflektivitäten bei den tatsächlichen Emissionswellenlängen der Emittoren erwartet man nach einer Abtastung des Spiegels gemäß Abschnitt 3.2 zunächst deutlich geringere Zählraten. Daher sollte für eine Abtastung des Spiegels zum erneuten Finden der voruntersuchten Emittoren hauptsächlich in einem Wellenlängenbereich ab 680 nm gesammelt werden, da ab etwa dieser Wellenlänge die Spiegelschichten höhere Transmission aufweisen. Vergleiche dazu Abbildung 3.6. Zur Optimierung der Transmission durch den Resonator dient zunächst ein Diodenlaser (Toptica DL100) bei 640 nm. Mittels eines Mikroskops kann der Abstand zwischen Planspiegel und Faserspiegel von oben beobachtet und über Mikrometerschrauben (Elliot Scientific MDE122) voreingestellt werden.

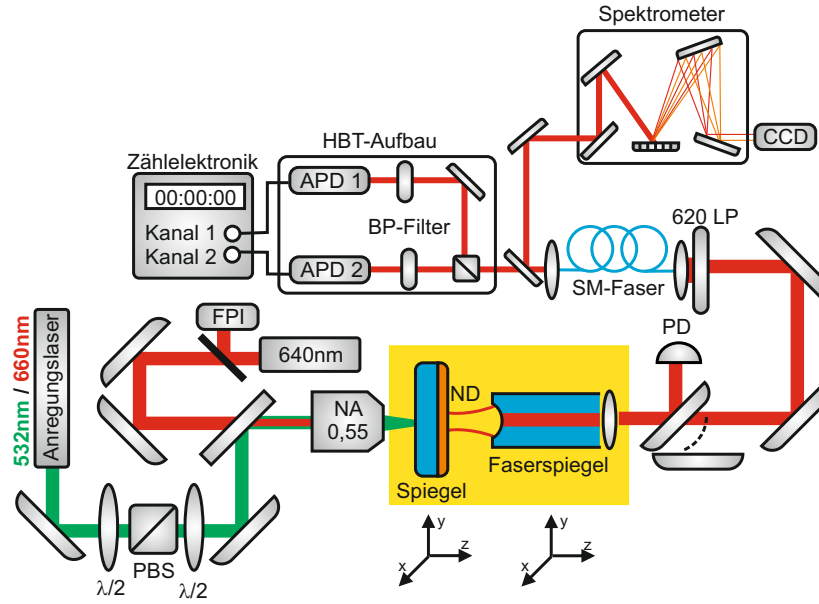


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Kopplung einzelner Quantenemitter in Festkörpersystemen an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Für Details: Siehe Text.

Beachte, dass zur Realisierung eines stabilen Resonators der Abstand der beiden Spiegel geringer sein muss, als der Krümmungsradius der gekrümmten Faserspiegel. Dies bedeutet im Rahmen dieser Arbeit Abstände $< 10 \mu\text{m}$. Eine solche Voreinstellung ist in Abbildung 3.9 gezeigt. In der Abbildung scheint es, als wären zwei Fasern im Experiment verwendet worden. Tatsächlich handelt es sich im rechten Teil der Abbildung lediglich um das Spiegelbild der optischen Faser im ebenen Spiegel. Der tatsächliche Abstand der beiden Spiegel entspricht in diesem Bild der Hälfte des sichtbaren Abstandes. Zwischen den Spiegeln ist der eingekoppelte Diodenlaser zu sehen.

Über ein Festkörpergelenk und ein Piezoelement wird der Abstand der beiden Spiegel nun periodisch in der Art variiert, dass mindestens ein freier Spektralbereich des Resonators überstrichen wird und die Transmission des Diodenlasers durch den Resonator auf einer Photodiode gemessen werden kann. Auf dieses Signal kann nun die Feinjustage des Resonators erfolgen, sodass auch das Fluoreszenzsignal im Anschluss optimal in den Resonator eingekoppelt und durch den Faserspiegel transmittiert werden kann.

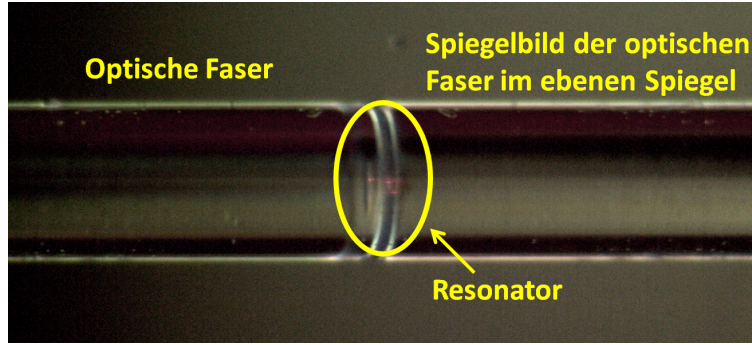


Abbildung 3.9: Lichtmikroskopaufnahme des Faserresonators. Zu sehen ist die optische Faser und das Spiegelbild der optischen Faser im Planspiegel. Der Zwischenraum in der Mitte stellt den eigentlichen Resonator dar. Der tatsächliche Spiegelabstand ist die Hälfte des sichtbaren Abstands. In der Mitte ist der in den Resonator eingekoppelte Diodenlaser zu erkennen.

3.3 Nachweis der Einzelphotonenemission

Prinzipiell könnten die Ankunftszeiten der Photonen mit einer einzelnen APD über eine Start/Stop-Messung aufgenommen werden. Allerdings können die verwendeten Zählleinheiten (*PicoQuant*, τ -SPAD-100) nur alle 70 ns (*Totzeit*) ein Ereignis detektieren. Geringere Zeitverzögerungen sind auf diese Art nicht zugänglich. Die spontanen Zerfallsraten der in dieser Arbeit untersuchten Festkörperemitter liegen mit 1-20 ns jedoch deutlich unter der Totzeit der Detektoren. Um dennoch Zugang zur Photonenstatistik zu erhalten werden zwei Photonendetektoren in Hanbury Brown-Twiss Konfiguration verwendet. Hier werden die ankommenden Photonen mittels eines 50:50 Strahlteilers auf beide Detektoren aufgeteilt. Die Photonenstatistik erhält man im Nachhinein als normiertes Histogramm der Zeitverzögerungen der Detektionen auf den beiden Detektoren mit passend gewählten Zeitintervallen (*time bins*).

Im Falle klassischer, kontinuierlicher Intensitäten zur Beschreibung thermischer Lichtquellen und kohärenter Laserfelder ist die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung wie folgt definiert:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (3.1)$$

Für eine Erweiterung auf quantisierte Lichtfelder werden die Erzeuger- und Vernichteroperatoren \hat{a}^\dagger , \hat{a} sowie der Photonenzahloperator $\hat{n} = \hat{a}^\dagger \hat{a}$ eingeführt. Der Erwartungswert $\langle \hat{n} \rangle$ ist der klassischen Intensität proportional. Dadurch kann dieser Erwartungswert in Gleichung 3.1 eingesetzt werden:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t+\tau) \hat{a}(t) \hat{a}(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2} \quad (3.2)$$

Ein Aufbau in Hanbury-Brown und Twiss Konfiguration bestehend aus einem 50:50-

Strahlteiler und zwei Einzelphotonendetektoren erlaubt die Messung dieser Funktion, die anschaulich die Wahrscheinlichkeit beschreibt, zu einer Zeitdifferenz $t + \tau$ auf dem zweiten Detektor ein Photon zu detektieren, wenn der erste Detektor zum Zeitpunkt t ein Ereignis detektiert hat. Insbesondere gilt:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2} = 1 + \frac{\Delta n^2 - n}{n^2} \quad (3.3)$$

mit der Schwankung Δn der Photonenzahl der auf den Strahlteiler auftreffenden Photonen. Für den für uns entscheidenden Fall einer echten Einzelphotonenquelle wird diese Schwankung verschwinden und wir erhalten:

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n} \quad (3.4)$$

Für eine perfekte Einzelphotonenquelle ($n = 1$) wird $g^{(2)}(0) = 0$.

Der Fall $g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau > 0)$ wird als *Antibunching* bezeichnet.

Zur Beschreibung der Dynamik unter kontinuierlicher Anregung mit Hilfe der Intensitätskorrelationsfunktion nehmen wir eine Levelstruktur aus Grundzustand $|1\rangle$, angeregtem Zustand $|2\rangle$ und metastabilem Zwischenzustand $|3\rangle$ an. Man beachte, dass dies die minimale Anzahl von Zuständen ist, um die gemessenen Korrelationsfunktionen zu modellieren. Alle drei Zustände und Übergangsraten sind in Abbildung 3.10 dargestellt. Dieses Modell konnte bereits erfolgreich auf andere Festkörperemitter wie NV- und SiV-Zentren in Diamant angewandt werden [45, 63, 158].

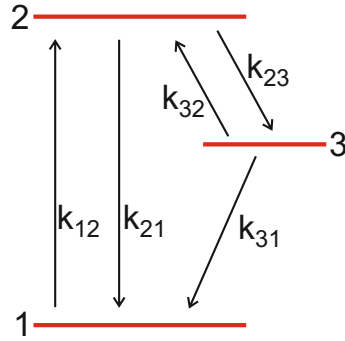


Abbildung 3.10: Drei-Niveau-System zur Modellierung der Dynamik für die Emission aus Defekten in hexagonalem Bornitrid unter kontinuierlicher Anregung. Eingezeichnet sind außerdem alle relevanten Übergangsraten. Diese können aus leistungsabhängigen Messungen der $g^{(2)}$ -Funktion gewonnen werden (siehe unten).

Unter Berücksichtigung aller eingezeichneten Zustände und Übergangsraten wird die Dynamik durch folgendes System von Ratengleichungen beschrieben:

$$\dot{\rho}_1 = -\rho_1 \cdot k_{12} + \rho_2 \cdot k_{21} + \rho_3 \cdot k_{31} \quad (3.5)$$

$$\dot{\rho}_2 = \rho_1 \cdot k_{12} - \rho_2 \cdot (k_{21} + k_{23}) + \rho_3 \cdot k_{32} \quad (3.6)$$

$$\dot{\rho}_3 = \rho_2 \cdot k_{23} - \rho_3 \cdot (k_{31} + k_{32}) \quad (3.7)$$

Hierbei bezeichnet ρ_i die Besetzung des Zustands i zur Zeit τ . Unter den Randbedingungen

$$\rho_1(\tau) + \rho_2(\tau) + \rho_3(\tau) = 1 \quad (3.8)$$

und

$$\rho_1(0) = 1, \quad \rho_2(0) = \rho_3(0) = 0 \quad (3.9)$$

lässt sich die $g^{(2)}$ -Funktion für dieses System analytisch berechnen:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - (1 + a) \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_1}} + a \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_2}} \quad (3.10)$$

Hier sind

$$\tau_{1,2} = 2 / \left(A \pm \sqrt{A^2 - 4B} \right) \quad (3.11)$$

$$a = \frac{1 - \tau_2(k_{31} + k_{32})}{(k_{31} + k_{32})(\tau_2 - \tau_1)} \quad (3.12)$$

$$A = k_{12} + k_{21} + k_{23} + k_{31} + k_{32} \quad (3.13)$$

$$B = k_{12}k_{23} + k_{12}k_{31} + k_{12}k_{32} + k_{21}k_{31} + k_{21}k_{32} + k_{23}k_{31} \quad (3.14)$$

Wir wählen nun einige der Raten k_{ij} leistungsabhängig. Es wird sich zeigen, dass sich die Dynamik aller untersuchter Systeme unter kontinuierlicher Anregung mit Leistung P beschreiben lassen. Bei der Diskussion der Ergebnisse werden wir genauer auf die verwendeten Parameter eingehen.

$$k_{12} = \sigma P, \quad k_{23} = k_{23}^0 + \mu P, \quad k_{32} = \lambda P, \quad k_{21} = \text{const}, \quad k_{31} = \text{const} \quad (3.15)$$

Mit dieser Vereinbarung gilt nun im Falle verschwindender bzw. unendlicher Anregungsleistung:

$$\tau_1^0 = \lim_{P \rightarrow 0} \tau_1 = \frac{1}{k_{21} + k_{23}^0} \quad (3.16)$$

$$\tau_2^0 = \lim_{P \rightarrow 0} \tau_2 = \frac{1}{k_{31}} \quad (3.17)$$

$$\tau_1^\infty = \lim_{P \rightarrow \infty} \tau_1 \propto \frac{1}{\sigma P} \quad (3.18)$$

$$\tau_2^\infty = \lim_{P \rightarrow \infty} \tau_2 \propto \frac{1}{(\mu + \lambda)P} \quad (3.19)$$

$$a^\infty = \lim_{P \rightarrow \infty} a = \frac{\mu/\lambda}{1 - (\mu + \lambda)/\sigma} \quad (3.20)$$

Diese Zusammenhänge erlauben durch leistungsabhängige Messungen der Korrelationsfunktion eine Bestimmung aller auftretenden Raten. Insbesondere liefert der Wert von τ_1 für verschwindende Anregungsleistung die Lebensdauer des angeregten Zustands.

$$\tau_1^0 = \lim_{P \rightarrow 0} \tau_1 = \tau_e \quad (3.21)$$

Für den perfekten Einzelemitter und idealisierte Detektionseinheiten werden niemals beide Detektoren zeitgleich ein Ereignis detektieren und es gilt $g^{(2)}(0) = 0$. Im Experiment tritt dieser Fall jedoch nicht ein. Gründe hierfür werden im Folgenden quantitativ diskutiert:

Quellen unkorrelierter Photonen

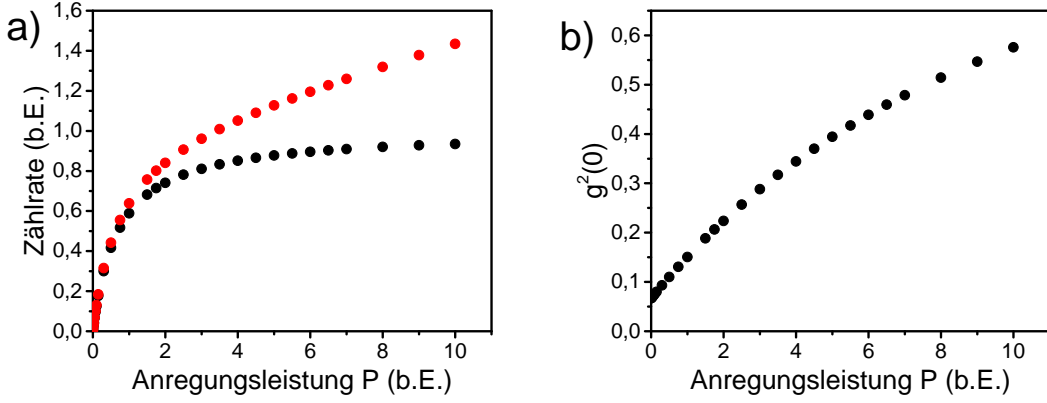


Abbildung 3.11: a) Beispielhaft simulierte Sättigungsmessung an einem Einzelphotonenemitter mit linearem Anstieg der Untergrundfluoreszenz aus dem Wirtsmaterial (Rote Punkte). Die schwarzen Punkte stellen die um die Untergrundphotonen korrigierte echte Sättigung des Emitters dar. b) Für jede Anregungsleistung in a) berechneten minimalen Werte, die die $g^{(2)}$ -Funktion für den simulierten Emitter aufgrund der Untergrundfluoreszenz zur Zeitverzögerung $\tau = 0$ annehmen kann.

Einen limitierenden Faktor für $g^{(2)}(0)$ stellt Untergrundfluoreszenz aus dem Wirtsmaterial der Emitter dar. Mit einer Gesamtzählrate G und einer darin enthaltenen Untergrundfluoreszenz U beträgt die Wahrscheinlichkeit, ein echtes Photon aus dem Emitter zu erhalten

$$p_f = 1 - \frac{U}{G}. \quad (3.22)$$

Die $g^{(2)}$ -Funktion für ein 3-Niveau-System wird für $p_f \neq 1$ modifiziert zu

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - p_f^2 \cdot (1 + a)e^{-\frac{|\tau|}{\tau_1}} + p_f^2 \cdot a \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_2}} \quad (3.23)$$

Die Korrelation zweier echter Photonen geschieht demnach mit der Wahrscheinlichkeit p_f^2 . Dies führt zu einer Erhöhung des Wertes für $g^{(2)}(0)$ auf

$$g^{(2)}(0) = 1 - p_f^2. \quad (3.24)$$

Information über vom Wirtsmaterial emittierte unkorrelierte Untergrundphotonen erhält man über leistungsabhängige Messung der Zählrate. Während Einzelphotonenemitter für hohe Leistungen in eine Sättigung übergehen, wird Untergrundfluoreszenz durch linearen Anstieg der Zählrate sichtbar. Abbildung 3.11a) veranschaulicht dies an einem simulierten Beispiel. Die roten Punkte stellen eine typische Sättigungsmessung dar, deren Verlauf einer Funktion der Form

$$Z = \frac{I_{\text{sat}} \cdot P}{P_{\text{sat}} + P} + C \cdot P \quad (3.25)$$

genügt. Hier sind I_{sat} und P_{sat} die Sättigungszählrate und die Sättigungsleistung. Der Parameter C simuliert den linearen Anstieg der Untergrundphotonen für hohe Leistungen. Die tatsächlich vom Emitter ausgesandten Photonen erhält man durch Korrektur um diesen linearen Anstieg (Schwarze Punkte). Hieraus erhält man für jede Anregungsleistung das Signal zu Untergrund Verhältnis p_f und damit die in Abbildung 3.11b) gezeigten minimalen Werte, die $g^{(2)}(0)$ annehmen kann. Neben der Untergrundfluoreszenz müssen auch die Dunkelzählraten der Photonendetektoren als Quelle unkorrelierter Photonen betrachtet werden. Die hier verwendeten APDs sind spezifiziert auf Dunkelzählraten <100 cts/s bzw <200 cts/s. In den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten konnten diese Spezifikationen stets eingehalten werden. Abbildung 3.12 zeigt für drei verschiedene Dunkelzählraten (200 cts/s, 500 cts/s, 1000 cts/s) der Detektoren den Anteil p_f des Signals (Emissionsrate) zur Gesamtzählrate (Emissionsrate + Dunkelzählrate). Beachte, dass die verwendete Dunkelzählrate bereits die Addition beider einzelner Dunkelzählraten der Detektoren darstellt. Bereits bei Zählraten um 30000 cts/s wird die Limitation von $g^{(2)}(0)$ bei Dunkelzählraten von 500 cts/s kleiner als $g^{(2)}(0) < 0,05$. Tatsächlich können wir in dieser Arbeit bereits bei geringen Anregungsleistungen deutlich höhere Zählraten erreichen (vgl. Abschnitt 4.2.3), sodass der Einfluss der Dunkelzählraten auf die Form der $g^{(2)}$ -Funktion im Rahmen unserer Messungen vernachlässigt werden kann.

Jitter

Die Detektion eines Photons auf den APDs erzeugt eine Elektronenlawine. Das Auslösen dieser Lawine unterliegt jedoch einer gewissen zeitlichen Ungenauigkeit (*timing jitter*). Dies resultiert in einer Limitierung der zeitlichen Auflösung aller detektierten Ereignisse. Diese Zeitungenauigkeit (Antwortfunktion der APDs) wurde durch stark abgeschwächte, ultrakurze Laserpulse gemessen, die direkt mit den APDs detektiert wurden. Dies lieferte eine gaußförmige Antwortfunktion mit einer Halbwertsbreite von

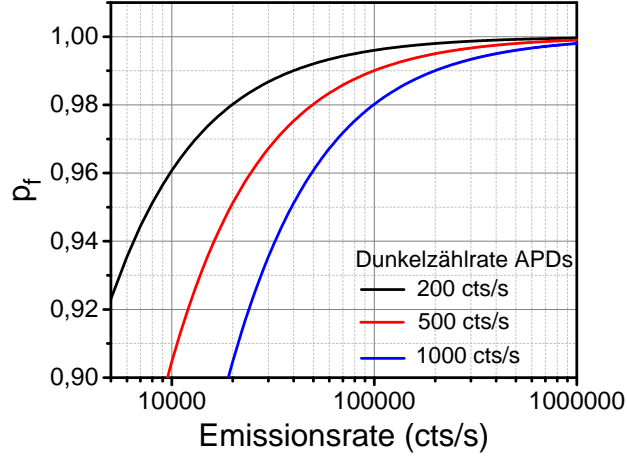


Abbildung 3.12: Wahrscheinlichkeit p_f , ein echtes Photon aus dem Emitter zu detektieren gegen die vollständige Emissionsrate für drei verschiedene Dunkelzählraten der Detektoren. Beachte, dass die hier verwendeten Dunkelzählraten die Addition der Dunkelzählraten zweier Detektoren darstellen, da wir in dieser Arbeit $g^{(2)}$ -Funktionen in Hanbury Brown-Twiss Konfiguration messen und daher zwei Detektoren verwenden.

$\sigma=354$ ps für *Perkin Elmer, SPCM AQRH-14* bzw. 296 ps für *PicoQuant, τ -SPAD-100* [158, 174, 175]. Es muss erwähnt werden, dass der Jitter der APDs die Hauptlimitierung der elektronischen Auflösung des HBT-Aufbaus darstellt. Die Jitter der verwendeten Zählelektroniken *Dotfast Consulting, Time Tag Module* und *PicoHarp3000* liegen mit 78 ps bzw. <12 ps deutlich unter denen der APDs. Die im Experiment gemessene $g^{(2)}$ -Funktion ergibt sich im Anschluss als Faltung der in Gleichung 3.23 gegebenen Funktion mit der gaußförmigen Antwortfunktion IRF(t) der Elektronik:

$$g^{(2)}(\tau) = \text{IRF}(\tau) * g^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \text{IRF}(\tau) * g^{(2)}(\tau - t) dt \quad (3.26)$$

und damit [175]:

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) = 1 - p_f^2(1+a) \frac{1}{2} & \left[e^{\left(-\frac{\tau-\tau_0}{\tau_1} + \frac{\sigma^2}{2\tau_1^2}\right)} \left(1 + \text{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\sigma} \left(\tau - \tau_0 - \frac{\sigma^2}{\tau_1}\right)\right)\right) \right] \\ & + e^{\left(-\frac{\tau-\tau_0}{\tau_1} + \frac{\sigma^2}{2\tau_1^2}\right)} \left(1 - \text{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\sigma} \left(\tau - \tau_0 - \frac{\sigma^2}{\tau_1}\right)\right)\right) \quad (3.27) \\ + p_f^2 a \frac{1}{2} & \left[e^{\left(-\frac{\tau-\tau_0}{\tau_2} + \frac{\sigma^2}{2\tau_2^2}\right)} \left(1 + \text{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\sigma} \left(\tau - \tau_0 - \frac{\sigma^2}{\tau_2}\right)\right)\right) \right] \\ & + \left[e^{\left(-\frac{\tau-\tau_0}{\tau_2} + \frac{\sigma^2}{2\tau_2^2}\right)} \left(1 - \text{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\sigma} \left(\tau - \tau_0 - \frac{\sigma^2}{\tau_2}\right)\right)\right) \right] \end{aligned}$$

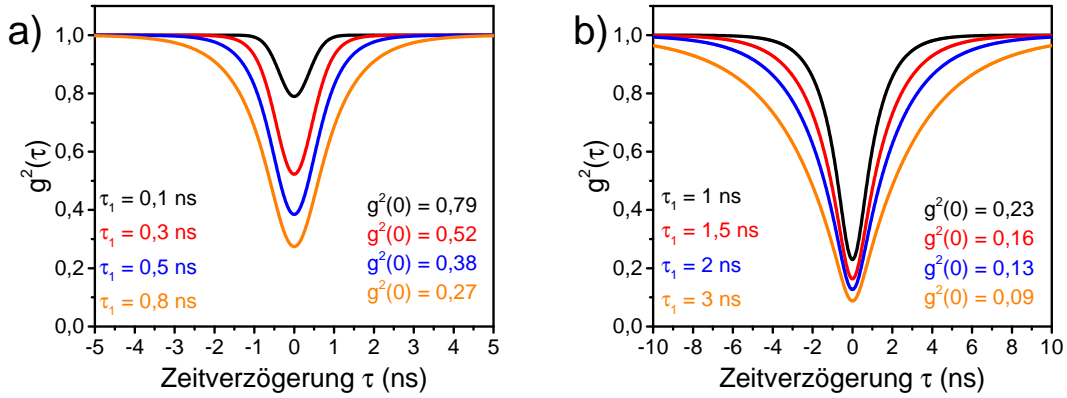


Abbildung 3.13: Einfluss des Jitters ($\sigma = 354$ ps) auf die Form der $g^{(2)}$ -Funktion für Zeitkonstanten τ_1 zwischen 0,1 ns und 3 ns. Auch für ideale Einzelphotonenemitter verschwindet die $g^{(2)}$ -Funktion für verschwindende Zeitverzögerungen $\tau = 0$ nicht mehr. In beiden Abbildungen ist $a=1$ und $p_f=1$, um den alleinigen Einfluss der Faltung der $g^{(2)}$ -Funktion mit der Antwortfunktion des HBT-Aufbaus zu demonstrieren.

Hier sind a , τ_1 und τ_2 die oben definierten Parameter und p_f die im letzten Abschnitt eingeführte Wahrscheinlichkeit, zwei echte Photonen aus dem Emitter miteinander zu korrelieren. Ferner definiert $\text{erf}(x)$ die Fehlerfunktion

$$\text{erf}(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt. \quad (3.28)$$

Seinen limitierenden Einfluss zeigt der Jitter insbesondere für Emittter deren Lebensdauern im Bereich ≈ 1 ns liegen. Für verschwindende Anregungsleistung beschreibt die Zeitkonstante τ_1 die Lebensdauer des angeregten Zustandes. In Abbildung 3.13a,b) ist Gleichung 3.27 für verschiedene Zeitkonstanten τ_1 dargestellt. Um lediglich den Einfluss der Faltung der $g^{(2)}$ -Funktion mit der Antwortfunktion des HBT-Aufbaus zu verdeutlichen sind die Parameter a und p_f auf 0 respektive 1, gesetzt. Es ist ersichtlich, dass für sinkendes τ_1 der minimale Wert der $g^{(2)}$ -Funktion bei $g^{(2)}(0)$ auch für ideal angenommene Emittter immer weiter steigt.

Mehrere Emittter

Häufig handelt es sich bei der beobachteten Emission um Photonen aus zwei unabhängigen, direkt benachbarten Emitttern. Aus diesem Grund muss auch der Einfluss eines zweiten oder mehrerer Emittter im Detektionsfokus auf die $g^{(2)}$ -Funktion berücksichtigt werden. Im Unterschied zu den in obigem Abschnitt erläuterten unkorrelierten Untergrundphotonen erscheinen diese nicht als linearer Anstieg in der Sättigungsmessung und müssen auf anderem Wege behandelt werden. Unter der Annahme, zwei

unterscheidbare und nicht interferierende Emittter mit Intensitäten I_1 und I_2 ($I_1 = z \cdot I_{\text{ges}}$, $I_2 = (1-z) \cdot I_{\text{ges}}$) befinden sich im Detektionsfokus, ergibt sich die $g^{(2)}$ -Funktion zu

$$\begin{aligned}
g^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle I_{\text{ges}}(t) I_{\text{ges}}(t + \tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} \\
&= \frac{\langle [I_1(t) + I_2(t)] [I_1(t + \tau) + I_2(t + \tau)] \rangle}{\langle I_1(t) + I_2(t) \rangle^2} \\
&= \frac{\langle I_1(t) I_1(t + \tau) + I_2(t) I_1(t + \tau) + I_1(t) I_2(t + \tau) + I_2(t) I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_1(t) + I_2(t) \rangle^2} \\
&= \frac{g_1^{(2)}(\tau) \langle I_1(t) \rangle^2 + \langle I_2(t) I_1(t + \tau) \rangle + \langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle + g_2^{(2)}(\tau) \langle I_2(t) \rangle^2}{\langle I_1(t) + I_2(t) \rangle^2} \\
&= g_1^{(2)}(\tau) \cdot \underbrace{\frac{\langle I_1(t) \rangle^2}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2}}_{z^2} + g_2^{(2)}(\tau) \cdot \underbrace{\frac{\langle I_2(t) \rangle^2}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2}}_{(1-z)^2} + \frac{\langle I_2(t) I_1(t + \tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} + \frac{\langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} \\
&= z^2 \cdot g_1^{(2)}(\tau) + (1-z)^2 \cdot g_2^{(2)}(\tau) + \frac{\langle I_2(t) I_1(t + \tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} + \frac{\langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2}
\end{aligned}$$

Um eine allgemeine Funktion zu erhalten, müssen wir die letzten beiden Kreuzterme dieses Ausdruckes noch diskutieren. Es gilt:

$$\langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) \cdot I_2(t + \tau) dt \quad (3.29)$$

Unter der Annahme zweier vollständig unabhängiger und unkorrelierter Emittter wird dieser Ausdruck nach der Integration über alle Zeiten t unabhängig von τ stets konstant sein (siehe Anhang B). Gleiches gilt für den anderen Kreuzterm. Diese Konstante können wir bestimmen, indem wir $g^{(2)}(0)$ explizit berechnen. Wir nehmen an, bei beiden Emitttern handele es sich um perfekte Einzelphotonenquellen, d.h. $g_1^{(2)}(0) = g_2^{(2)}(0) = 0$;

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle I_2(t) I_1(t) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} + \frac{\langle I_1(t) I_2(t) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} = 2z(1-z) \cdot \frac{\langle I_{\text{ges}} \rangle \langle I_{\text{ges}} \rangle}{\langle I_{\text{ges}} \rangle^2} = 2z(1-z) \quad (3.30)$$

Allgemein ergibt sich demnach:

$$g^{(2)}(\tau) = z^2 \cdot g_1^2(\tau) + (1 - z)^2 \cdot g_2^2(\tau) + 2z(1 - z) \quad (3.31)$$

In diesem Fall erhöht sich der minimal zu erreichende Wert für $g^{(2)}(0)$ abhängig vom Verhältnis der Intensitäten der beiden einzelnen Emitter. Dies ist in Abbildung 3.14 graphisch dargestellt. Je kleiner das Verhältnis der Intensitäten beider Emitter im Detektionsfokus ist, desto schwieriger ist es, den schwächeren der beiden nachzuweisen. Zur Vollständigkeit zeigt Abbildung 3.14 die Auswirkung mehrerer Emitter gleicher Intensität im Detektionsfokus. Insbesondere ist in Übereinstimmung mit Abbildung 3.14a) die Situation zweier Emitter gleicher Intensität zu erkennen. In diesem Fall gilt: $g^{(2)}(0)=0,5$.

Bislang haben wir die Limitierung von $g^{(2)}(\tau)$ für $\tau = 0$. Die vollständige Auswertung einer gemessenen Korrelationsfunktion zweiter Ordnung erfolgt zusammenfassend in drei Schritten:

1. Bestimmung der Wahrscheinlichkeit p_f^2 , zwei echte Photonen aus dem System miteinander zu korrelieren, aus einer Sättigungsmessung. Im Idealfall sollten die Anregungsleistungen in einen Bereich hineinreichen, der deutlich größer ist als die Sättigungsleistung P_{sat} des Emitters, um eventuellen linearen Untergrund aus dem Wirtsmaterial in der Sättigungsmessung beobachten und entsprechend anpassen zu können.
2. Anpassen der Daten gemäß Gleichung 3.27, wobei für den Fit p_f als Konstante gesetzt wird. Extraktion der Zeitkonstante τ_1 aus der Anpassung und Abgleich, ob diese die Daten reproduziert (Zeitkonstanten und Einbruch).
3. Insbesondere für den Fall, dass die Anpassung die Daten im Bereich $\tau=0$ unterschätzt, sind vermutlich mehrere Emitter im Detektionsfokus und die Daten können nach Gleichung 3.31 angepasst werden.

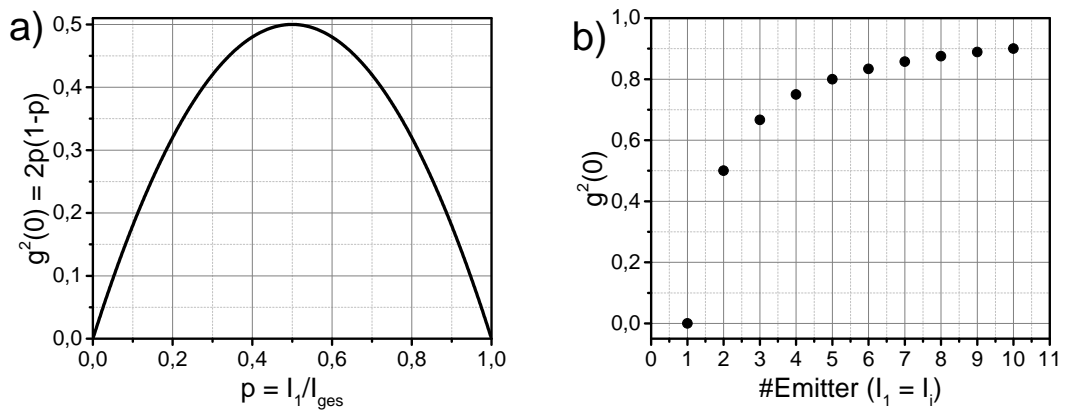


Abbildung 3.14: a) Minimaler Wert der $g^{(2)}$ -Funktion an der Stelle $g^{(2)}(0)$ für zwei unterscheidbare, nicht interferierende Emitter mit unterschiedlichen Intensitätsverhältnissen. Je kleiner das Verhältnis der Intensitäten, desto schwieriger ist der Nachweis zweier Emitter im Detektionsfokus. b) Einfluss von n gleichwertigen Emitttern im Detektionsfokus. Insbesondere stimmen a) und b) für den Fall $I_1 = I_2 = 0,5$ (a) und $n=2$ (b) mit $g^{(2)}(0)=0,5$ natürlicherweise miteinander überein.

Kapitel 4

Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

Die Arbeit verfolgt das Ziel der Untersuchung von Quantenemittern in hBN und deren Kopplung an faserbasierte Mikroresonatoren. Dieses Kapitel behandelt die experimentellen Ergebnisse und deren Diskussion. Abschnitt 4.1 gibt einen Überblick über die verwendeten Probensysteme, ehe Abschnitt 4.2 die spektroskopischen Untersuchungen der Emission aus Multilagen-Flocken hBN präsentiert und die Ergebnisse mit Bezug auf Resultate, die während der Entstehung dieser Arbeit in der Literatur veröffentlicht wurden, diskutiert. Diese Diskussion behandelt insbesondere detaillierte Beobachtungen in der Photonenstatistik der Emission, die in der Literatur bislang nicht berichtet wurde. Im Hinblick auf deterministische Kopplung an Mikroresonatoren ist eine gezielte Aktivierung der Emitter in den verwendeten Proben wünschenswert. Diesem Thema widmet sich insbesondere Abschnitt 4.2.9. Als alternatives Probensystem diskutieren wir Emission aus Monolagen in Abschnitt 4.3. Die in den Multilagen beobachtete charakteristische Emission kann auch in Monolagen-Flocken hBN beobachtet werden. Im darauffolgenden Abschnitt 4.4 werden die Versuche zur Kopplung der Emission an Resonatoren behandelt. Dieser Abschnitt zeigt und diskutiert, inwiefern die untersuchten Multilagen Flocken herausfordernde Limitierungen an die erwarteten Kopplungseffizienzen stellen und wie diese Limitierungen durch die Wahl von Monolagen Flocken hBN als Wirtsmaterial umgangen werden können.

4.1 Proben und Probenpräparation

Zur Untersuchung von Quantenemittern in Punktdefekten aus hexagonalem Bornitrid verwenden wir kommerziell erhältliche Flocken aus einzelnen (Monolagen) oder mehreren (Multilagen) atomaren Lagen (*Graphene Supermarket*).

4.1.1 Multilagen

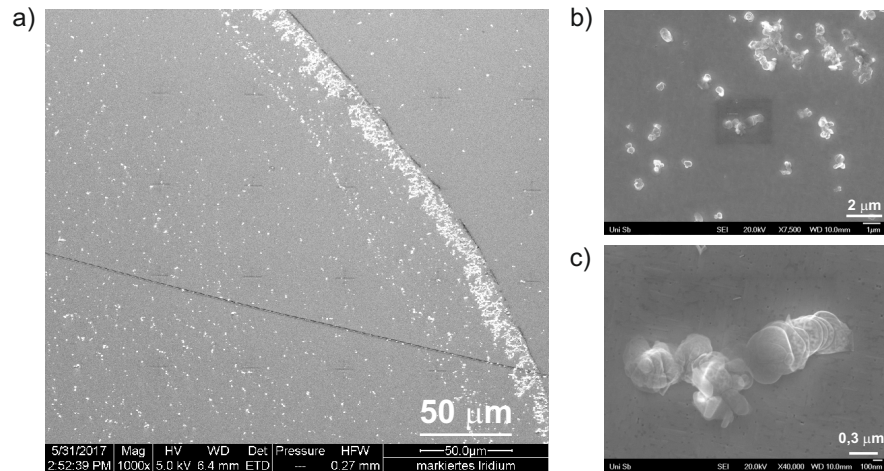


Abbildung 4.1: Rasterelektronenmikroskop-Aufnahmen von Multilagen Flocken hBN. Die Flocken sind ursprünglich in einer Flüssigkeit (Zusammensetzung: 50% Wasser, 50% Ethanol) gelöst. a) Rand und innerer Bereich eines Tropfens der Flüssigkeit ($5\text{ }\mu\text{l}$) auf einem mit Markern versehenen Siliziumsubstrat mit Iridiumschicht. Am Rand des Tropfens sind stärkere Ablagerungen zu erkennen. In der Mitte findet man eine homogene Verteilung, die eine gezielte Adressierung einzelner Flocken im Experiment erlaubt. b,c) Detailaufnahme von Multilagen Flocken hBN. Trotz der Behandlung im Ultraschallbad findet man Agglomerate mehrerer Partikel.

Laut Datenblatt beträgt die laterale Größe der Multilagen-Flocken etwa 50 nm bis 250 nm mit etwa 5 übereinandergeschichteten Monolagen. Diese Flocken liegen gelöst in einer Flüssigkeit (Konzentration: 5,4 mg/ml; Zusammensetzung: 50% Wasser, 50% Ethanol) vor. Durch einfaches Auftropfen von 5 - 10 μl der Lösung auf ein Substrat erhält man durch diese Konzentration bereits sehr homogene Verteilungen. Wir verwenden Siliziumsubstrate mit einer Iridiumschicht zur spektroskopischen Untersuchung bzw. ebene DBR-Spiegel für weiterführende Resonatorkopplungsexperimente. Abbildung 4.1a) zeigt eine solche Verteilung der Partikel innerhalb eines Tropfens auf einem Siliziumsubstrat. Am Rand des Tropfens sind stärkere Ablagerungen zu beobachten. Im Inneren findet man eine homogene Verteilung, die es erlaubt, einzelne Flocken im Experiment zu adressieren. Um die Flüssigkeit verdampfen zu lassen, wird das Substrat auf einer Heizplatte auf 70 °C aufgeheizt. Vor dem Auftropfen wird eine kleine Menge der

Flüssigkeit für 20 Minuten im Ultraschallbad behandelt, um etwaige Agglomerate zu trennen. Dennoch bleiben einige Flocken aneinander haften (Abbildung 4.1b,c) Außerdem sind in Abbildung 4.1a) in das Substrat eingeschriebene Kreuze als Markierungen zu erkennen, die der Orientierung für spektroskopische Experimente dienen.

4.1.2 Monolagen

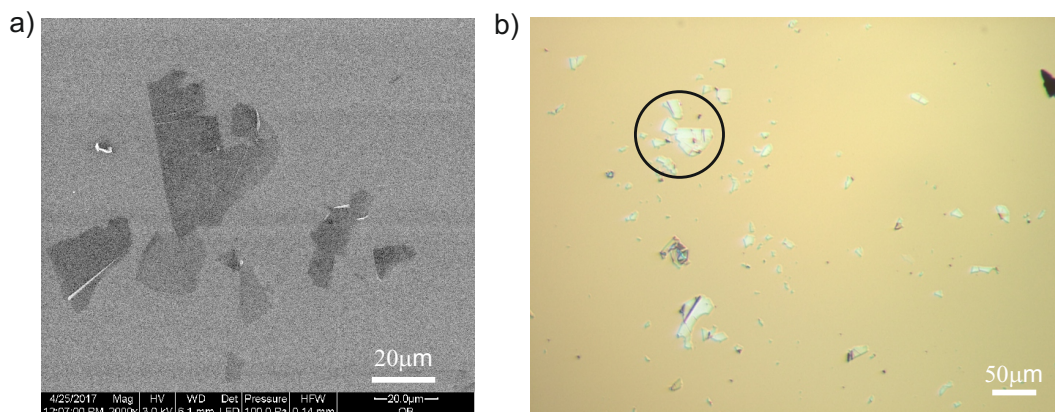


Abbildung 4.2: a) Rasterelektronenmikroskop Aufnahme einer Monolagen Flocke hBN auf einem DBR-Spiegel. Im Vergleich zu den Multilagen Flocken besitzen die Monolagen deutlich größere laterale Ausdehnung. Die Aufnahme zeigt eine für die gesamte Probe repräsentativen Flocke. b) Lichtmikroskopaufnahme von Monolagen Flocken hBN auf dem gleichen DBR-Spiegel wie in a). Markiert ist der Bereich, der in a) im Detail dargestellt ist.

Neben den oben besprochenen Multilagen-Partikeln untersuchen wir in dieser Arbeit auch Monolagen-Flocken hBN. Diese Filme wurden auf einer 20 µm dicken Kupferfolie über eine Fläche von 1x2 Zoll beidseitig in einem CVD-Prozess hergestellt. Das Kupfer dient als Katalysator für den Wachstumsprozess und ist etwa zu 90-95% mit dem hBN Film bedeckt. Zur Weiterverarbeitung (Defektaktivierung durch Ausheizen, Elektronenbestrahlung, Ionenbestrahlung (siehe Abschnitt 4.3) wird das hBN mechanisch von der Kupferfolie durch Abreiben gelöst und auf diese Weise zunächst auf einem 5x5 mm Si/SiO₂ Chip übertragen [176]. Der homogene hBN Film zerbricht bei diesem Transfer in viele kleinere Flocken. Abbildung 4.2a) zeigt beispielhaft eine Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines so entstandenen Partikels. In Abbildung 4.2b) ist eine Lichtmikroskop Aufnahme über einen etwas größeren Bereich gezeigt. Hervorgehoben ist der Flocken im linken Bild. Es ist zu erkennen, dass die durch den Transfer auf den Si/SiO₂ Chip entstandenen Partikel in Größe und Form sehr stark variieren. Insgesamt weisen diese Flocken aber dennoch deutlich größere laterale Ausdehnungen (bis 50 µm) auf als die oben besprochenen Multilagen Partikel. In Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Dirk Englund (*Massachusetts Institute of Technology*) wurden diese

Monolagen in einem PMMA Verfahren auf die Oberfläche eines dielektrischen Spiegels transferiert. Vor dem Transfer wurde die Probe 30 Minuten in Argon-Gas gereinigt. Im Anschluss wurde die Probe unter einem konstanten Argon-Fluss von 50 sccm bei 1 bar Druck ausgeheizt. Hierzu wurde zunächst die Temperatur mit einer Rate von 2°C pro Minute erhöht, bis die Endtemperatur von 1000°C erreicht war. Bei dieser Temperatur wurde die Probe danach 30 Minuten ausgeheizt. Während allen Prozessen herrschte ein konstanter Argon-Fluss von $50\text{ cm}^3/\text{min}$ bei Normaldruck.

4.2 Spektroskopie an Defekten in Multilagen hBN

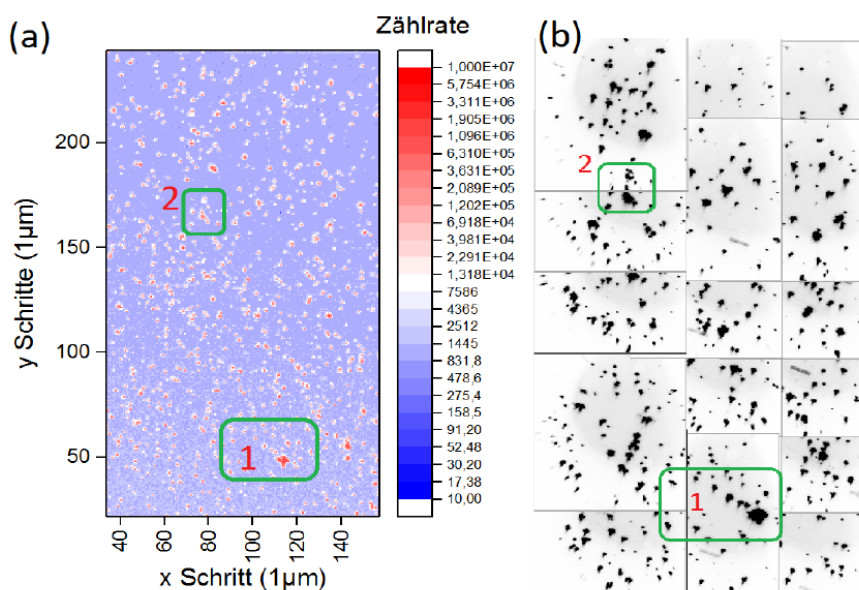


Abbildung 4.3: a) Abrasterung der Probenoberfläche im Konfokalmikroskop unter kontinuierlicher Anregung bei 532 nm mit Anregungsleistung $P=0,1\text{ mW}$. b) Invertierte Weißlichtabbildung der gleichen Region wie in a). Schwarz dargestellte Punkte stellen streuende hBN-Partikel dar.

Die Untersuchung erfolgt in dem in Abschnitt 3.1 vorgestellten Konfokalmikroskop. Abbildung 4.3a) zeigt eine Abrasterung der Probe auf einem Bereich von $150 \times 250\text{ }\mu\text{m}^2$ im Konfokalmikroskop unter kontinuierlicher Anregung bei 532 nm mit Anregungsleistung $P = 0,1\text{ mW}$. In 4.3b) ist die gleiche Region der Probe mittels einer CCD-Kamera abgebildet. Es ist auffällig, dass jedes Partikel, das in der CCD-Abbildung zu sehen ist, unter Laseranregung Fluoreszenz zeigt. In der CCD-Abbildung sind darüberhinaus die in die Probenoberfläche einbeschriebenen Marker zu erkennen. Die Verteilung der Partikel erlaubt zusammen mit der Auflösung des konfokalen Mikroskops deren gezielte Adressierung.

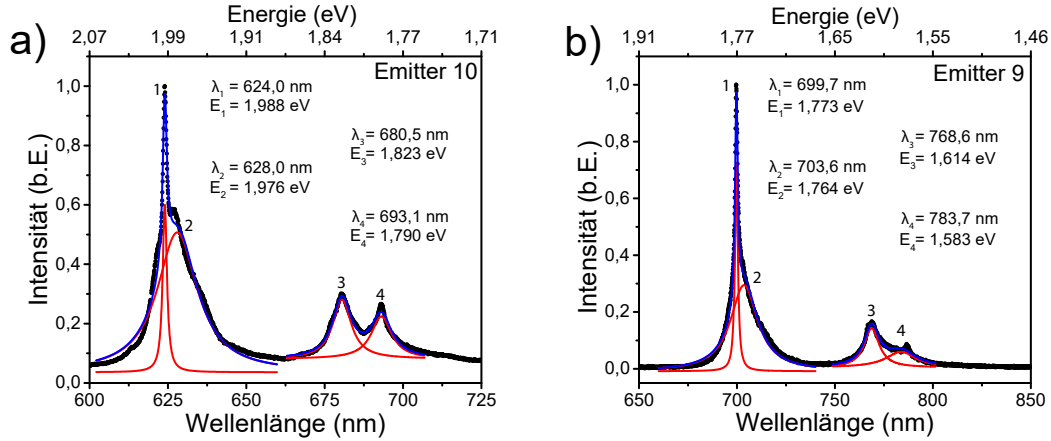


Abbildung 4.4: Zwei typische Spektren, wie sie an Defekten in Multilagen Flocken hBN gemessen werden können. Typischerweise setzen sich die Spektren aus einer asymmetrischen, dominanten Spektrallinie (1,2) mit angrenzenden Seitenbändern (3,4) zusammen. Stark auffällig ist hier insbesondere der große Unterschied in der Zentralwellenlänge der dominanten Linien 1. Für ausführliche Diskussion: Siehe Text.

Abbildung 4.4 zeigt zwei typische Spektren, wie sie an Defekten in diesen Flocken gemessen werden können. Anpassung aller auftretenden Linien durch Lorentzkurven (Fitparameter in Abbildung 4.4 angegeben) liefert charakteristische Beobachtungen, die in den folgenden Abschnitten im Detail diskutiert werden.

1. Die Zentralwellenlängen der dominanten Linie variieren von $\lambda_{\text{ZPL}}^{10} = 624 \text{ nm}$ bis $\lambda_{\text{ZPL}}^9 = 699,7 \text{ nm}$.
2. Unter der dominanten Spektrallinie liegen zwei lorentzförmige Übergänge der Form

$$I_L(\lambda) = \frac{2A}{\pi} \cdot \frac{\Delta\lambda_L}{4(\lambda - \lambda_0)^2 + \Delta\lambda_L^2}. \quad (4.1)$$

Hier sind λ_0 die jeweilige Zentralwellenlänge, $\Delta\lambda_L$ die Halbwertsbreite und A eine Konstante proportional zur Fläche unter den Lorentzkurven.

3. Trotz des großen Unterschiedes in den Zentralwellenlängen der dominanten Linien im Spektrum ist der energetische Abstand zwischen diesen und den zwei rotverschobenen Seitenbändern ähnlich ($\Delta E^{10} = 165 \text{ meV}$, $\Delta E^9 = 159 \text{ meV}$).

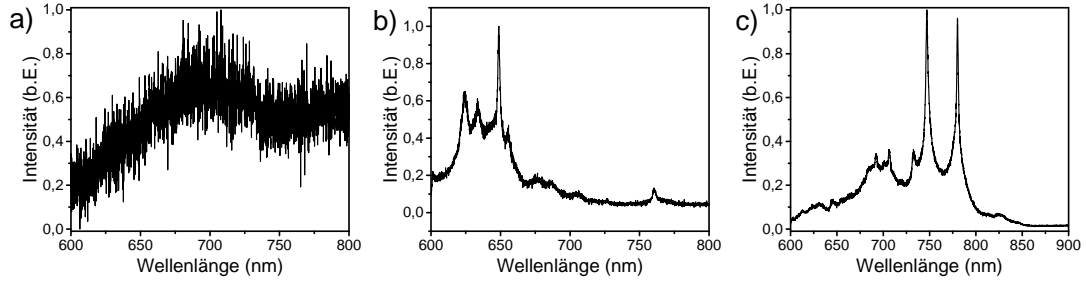


Abbildung 4.5: Häufig beobachtbare, jedoch zur weiteren Untersuchung und Einordnung der Defekte nicht weiter in Betracht gezogene Fluoreszenz. *a)* Untergrund ohne klar erkennbare Spektrallinien. *b,c)* Mehrere Spektrallinien sichtbar, jedoch liegt auch hier starker Untergrund zugrunde. Darüberhinaus stammt diese Emission nicht aus einem einzelnen, lokalisierten Defekt.

Es ist zu beachten, dass im weiteren Verlauf der Arbeit lediglich Emission aus Defekten betrachtet wird, die diese typische spektrale Charakteristik aufweist. Es muss erwähnt werden, dass alle untersuchten Multilagen Flocken Fluoreszenz zeigen. In etwa 95 Prozent aller Fälle ist diese Emission jedoch entweder reine Untergrundfluoreszenz (Abb. 4.5a) oder es erscheinen mehrere Spektrallinien, deren Form im Unterschied zu den oben gezeigten Spektren keiner beobachtbaren Systematik unterliegt (Abb. 4.5b,c). Drei Beispiele für solche auf der einen Seite zwar häufig auftretende, jedoch zur weiteren Untersuchung nicht in Betracht gezogenen Fluoreszenz sind in Abbildung 4.5 gezeigt.

4.2.1 Ursprung der Emission

In bisherigen Veröffentlichungen zu der in obigem Abschnitt beschriebenen Fluoreszenz aus hexagonalem Bornitrid wird davon ausgegangen, dass sie in Analogie zu Farbzentren in Diamant durch elektronische Übergänge in lokalisierten Defekten im Wirtsmaterial erzeugt wird. Es ist jedoch nicht abschließend geklärt, um welche Art von Defekt es sich handelt. In [80] ziehen die Autoren nach ausführlichen theoretischen Betrachtungen die drei Defekte $N_B V_N$, $O_B O_B V_N$ und $C_B V_N$ als Ursache für die beobachtete Emission in Betracht. Diese Defekte sind schematisch in Abbildung 4.6 zusammen mit den berechneten Zentralwellenlängen der Null-Phononen Übergänge und der Huang-Rhys Faktoren dargestellt.

Abbildung 4.7b) zeigt eine Zusammenstellung von 20 in dieser Arbeit gemessenen Huang-Rhys Faktoren an Emittlern, deren Spektren vergleichbar sind zu Abbildung 4.4. Wir nehmen hier zunächst an, dass von den vier zur Anpassung des gesamten Spektrums notwendigen Lorentzkurven Linie 1 den Null-Phononen Übergang darstellt, während es sich bei den Linien 2-4 um Phononenseitenbänder handelt. Die entsprechenden Huang-Rhys Faktoren in Abbildung 4.7b) sind gegen die Zentralwellenlänge der jeweiligen Null-Phononen Linie aufgetragen. In Abbildung 4.6 ist ersichtlich, dass die simulierten Huang-Rhys Faktoren für die Defekte $N_B V_N$ und $O_B O_B V_N$ deutlich zu

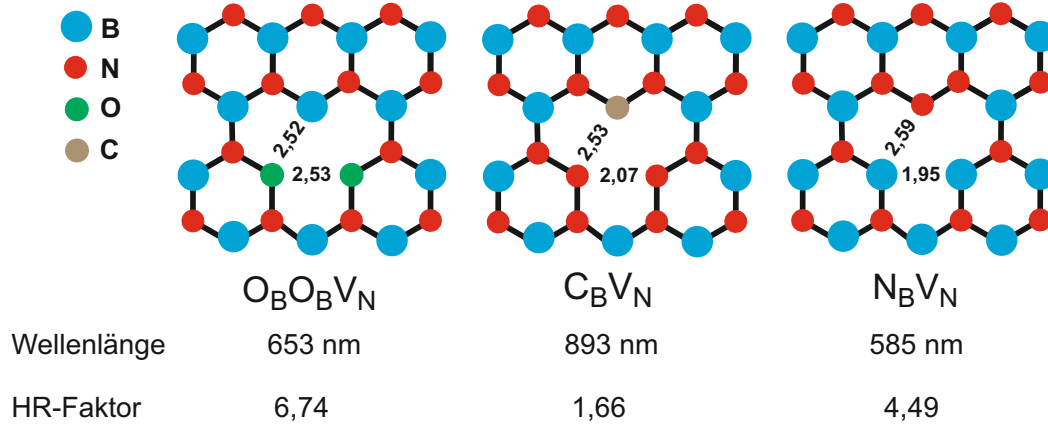


Abbildung 4.6: Durch Tawfik et al. in [80] vorgeschlagene Defekte zur Beschreibung der beobachteten Emission. Die Tabelle gibt für jeden Defekt die Zentralwellenlänge der Emission der dominanten Linie im Spektrum und die jeweiligen erwarteten Huang-Rhys-Faktoren an. Unter der Annahme, dass es sich bei den vier beobachteten Linien im Spektrum um eine Null-Phononen Linie mit drei angrenzenden Phononen Seitenbändern handelt kann nur die theoretische Vorhersage des $C_B V_N$ -Defekt den experimentellen Huang-Rhys-Faktor (Abb.4.7) reproduzieren.

hoch sind im Vergleich zu den in Abbildung 4.7b) experimentell bestimmten Werten. Für den $C_B V_N$ -Defekt liegen simulierte und experimentelle Werte in deutlich besserer Übereinstimmung. Gemittelt über alle Messungen beträgt er $S=1,8\pm0,6$. Eine Simulation der Zentralwellenlänge der Null-Phononen Linie liefert für den $C_B V_N$ -Defekt jedoch eine Wellenlänge von $\lambda_1=893$ nm [80]. In Übereinstimmung mit der Literatur konnte in dieser Arbeit eine kontinuierliche Verteilung der Emissionswellenlängen im Bereich zwischen 600 nm und etwa 750 nm nachgewiesen werden (vgl. Abb.4.7a) [64, 70, 177]. Kubanek et al messen insgesamt 627 Emissionslinien im Wellenlängenbereich zwischen 580 nm und 800 nm bei kryogenen Temperaturen. Sie weisen diesen Linien unabhängig von sonstigen Betrachtungen wie beispielsweise der Form der Linien bei Raumtemperatur oder der Photonenstatistik der Emission gemäß der Berechnungen der Zentralwellenlängen in [80] mit einer Unsicherheit von jeweils 0,3 eV spezifischen Defekten zu. Auffällig ist, dass die Anzahl der beobachteten Linien ab 720 nm sehr stark abnimmt und insbesondere der vorhergesagte Defekt bei 893 nm nicht beobachtet wird. Darüber hinaus ist zu erwähnen, dass keine Vorauswahl der Linien in der in [177] gezeigten Verteilung getroffen wird, wohingegen in dieser Arbeit explizit nur solche Emittoren betrachtet werden, die bei Raumtemperatur die in Abbildung 4.4 gezeigte spektrale Form aufweisen. Die kontinuierliche Verteilung der Emissionswellenlängen lässt darauf schließen, dass Verspannungen im Material um den Defekt die Energieabstände zwischen den beteiligten Niveaus beeinflussen. Diese Beobachtung ist charakteristisch für Emission aus Defekten in Festkörpersystemen [20, 157, 178]. Grosso et al. zeigten darüber hinaus, dass durch extern angelegte Verspannungen Energieverschiebungen der Zentralwellenlängen bis zu

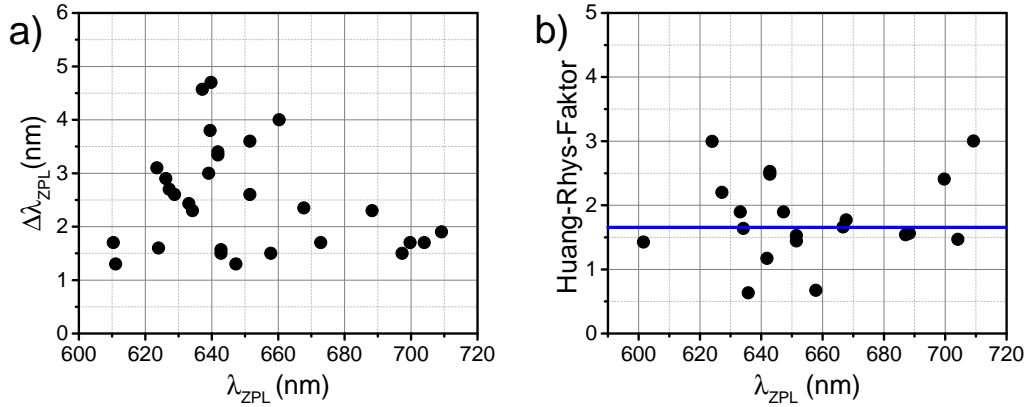


Abbildung 4.7: a) Linienbreiten der dominanten Linien gegen deren Zentralwellenlängen für 29 Emittoren in Multi-Lagen hBN bei Raumtemperatur unter kontinuierlicher Anregung bei 532 nm. In der Literatur werden Linien zwischen 580 nm und 800 nm detektiert. Aufgrund der verwendeten Detektionsfilter messen wir hier lediglich im Wellenlängenbereich zwischen 600 nm und 700 nm. Die kontinuierliche Verteilung der Emission sowie die Linienbreiten bei Raumtemperatur liegen im Einklang mit Reports aus der Literatur [64–72, 128]. b) Huang-Rhys Faktoren für 20 Emittoren, die den typischen spektralen Fingerabdruck für Quantenemitter in hBN zeigen (vgl. Abb. 4.4). Im Mittel beträgt der Huang-Rhys Faktor $S=1,8\pm0,6$. Dies liegt in sehr guter Übereinstimmung mit dem für die Emission vorgeschlagenen $C_B V_N$ -Defekt [80].

6 meV möglich sind [176]. Dies ist im Vergleich zu der beobachteten Spanne der Emission von bis zu 300 meV vergleichsweise gering, jedoch muss die von außen angelegte Verspannung stets relativ zur bereits im Material vorhandenen Verspannung betrachtet werden. Zwischen der Zentralwellenlänge der Null-Phononen Linie und dem Wert des Huang-Rhys Faktors gibt es darüber hinaus keine erkennbare Korrelation. Einen Einfluss auf die Zentralposition der Emissionslinien hat darüber hinaus die Anzahl der Lagen des hBN. So messen Du et al. in [179] bei der Untersuchung eines Bandkanten nahen Übergangs bei über 5 eV zwei Spektrallinien bei etwa 5,3 eV und 5,47 eV, die beide monoton mit abnehmender Anzahl der Lagen blau verschieben, deren Abstand jedoch konstant bleibt. Der Übergang bei 5,47 eV entspricht einem Donor-Akzeptor Übergang, während die Linie bei 5,3 eV mit der Phononen Mode E_{2g} im Abstand von etwa 170 meV übereinstimmt (vgl. Abschnitt 4.2.2). Beim Übergang von 100 Lagen zu 8 Lagen schieben die Emissionslinien von 5,299 eV (234,1 nm) bis 5,459 eV (227,3 nm). Dieser Effekt der Abhängigkeit der Zentralposition des Übergangs von der Anzahl der Atomlagen des hBN könnte ebenso einen Einfluss auf die Zentralwellenlänge der in dieser Arbeit untersuchten und bereits in der Literatur berichteten Emittoren bewirken.

4.2.2 Phononen Seitenbänder

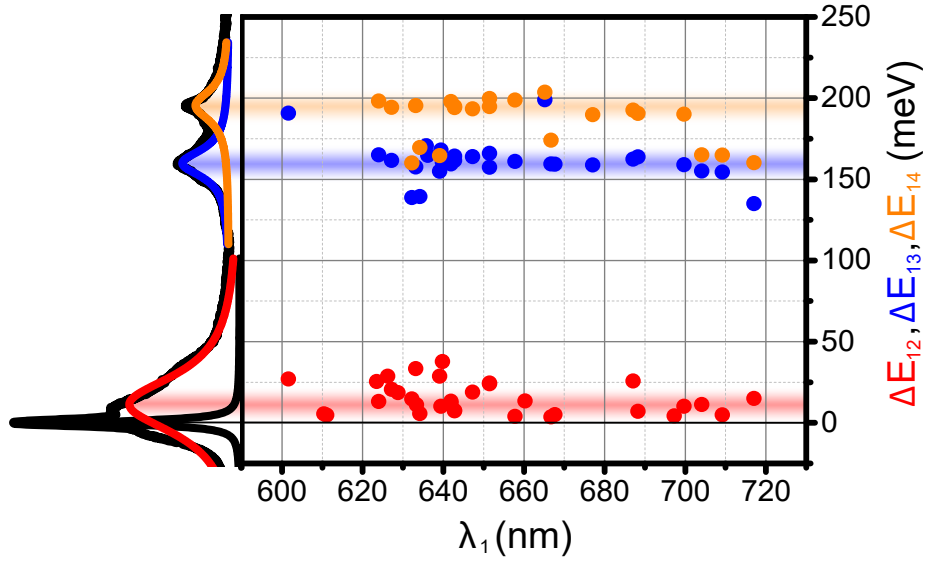


Abbildung 4.8: Links: Für spezifische Defekte in Multi-Lagen hBN charakteristisches Spektrum, angepasst durch 4 Lorentzkurven. Rechts: Energieabstände zwischen der Linie mit der höchsten Energie und den drei rotverschobenen Linien für 30 Emittor, aufgetragen gegen die Zentralwellenlänge von Linie 1. Die farbigen Linien dienen als Führung für die Augen. Es wird deutlich, dass die energetischen Abstände über alle Emittor relativ konstant bleiben. Sie betragen: $\Delta E_1 = 12 \pm 10$ meV, $\Delta E_2 = 157,9 \pm 16,6$ meV und $\Delta E_3 = 187,3 \pm 14,7$ meV. Insbesondere hat die Position von Linie 1 im Spektrum keinen erkennbaren Einfluss auf die relativen Positionen der restlichen Linien.

Anpassung aller gemessener Spektren liefert jeweils die energetischen Abstände zwischen der dominanten Linie 1 und den zusätzlich erscheinenden rot verschobenen Linien. Wir nehmen zunächst an, dass der Ursprung dieser zusätzlichen Linien in der Wechselwirkung mit Phononen begründet liegt und diskutieren, inwieweit diese Annahme im Rahmen bisheriger Messungen gerechtfertigt ist. Zur Veranschaulichung der Situation zeigt Abbildung 4.8 links ein typisches Spektrum inklusive der Anpassung durch Lorentzkurven. Lorentzförmige Linien bei Raumtemperatur sind ein klares Zeichen, dass die beteiligten Übergänge einer homogenen Linienverbreiterung durch Phononen unterliegen. Im rechten Bereich sind für alle untersuchten Emittor die jeweiligen Energieabstände der Phononen-Seitenbänder von der dominanten Linie in Abhängigkeit der Zentralwellenlänge aufgetragen. Die eingezeichneten Balken sollen die relativ konstant bleibenden energetischen Abstände verdeutlichen. Eine Mittelung über alle Messungen liefert die Abstände zwischen Linie 1 und den Phonenseitenbanden 2,3,4:

$\Delta E_{12} = 12 \pm 10$ meV, $\Delta E_{13} = 157,9 \pm 16,6$ meV und $\Delta E_{14} = 187,3 \pm 14,7$ meV. Diese Werte deuten an, dass die zugehörigen Phononen-Moden, an die der strahlende Übergang

koppelt, für alle Emitter über diesen weiten Wellenlängenbereich die gleichen sind und sich die kristallographische Struktur der Defekte ähneln [65]. Es muss außerdem erwähnt werden, dass neben den Zentralpositionen der energetisch höchsten Linie 1 auch die Linienbreiten der Übergänge keinen erkennbaren Einfluss auf die energetischen Abstände aller vier Linien erkennen lassen. Wie Tabelle 2.1 zusammenfasst, liegen in hBN zwei Raman-aktive Moden bei Energieverschiebungen von ca. $51,8 \text{ cm}^{-1}$ ($6,4 \text{ meV}$) und 1366 cm^{-1} (169 meV) [123]. Diese liegen innerhalb der experimentellen Fehlergrenzen in sehr guter Übereinstimmung mit gemessenen Werten und lassen den Schluss zu, dass die Elektronen eher mit delokalisierten Phononen-Moden des Materials als mit defektspezifischen lokalisierten Vibrationsmoden wechselwirken. Diese Werte liegen darüber hinaus in sehr guter Übereinstimmung mit einem Extremum in der Phononenzustandsdichte in hBN bei etwa 165 meV [180]. Die Ursache für Abweichungen in den Abständen zwischen ZPL und Phononenseitenbanden kann in einer Verschiebung der Raman-Linie des hBN durch Verspannungen begründet liegen.

Auf diese Weise lässt sich das dritte Phononenseitenband bei $\Delta E_{14} = 187,3 \pm 14,7 \text{ meV}$ jedoch nicht erklären. Einen möglichen Erklärungsansatz liefert folgende Überlegung, die wir in späteren Abschnitten erneut aufgreifen werden: Nehmen wir an, die Asymmetrie des Übergangs entsteht nicht durch Wechselwirkung des Defektes mit Phononen Moden des Gitters, sondern durch Emission eines zweiten Null-Phononen-Zerfalls. Dies wäre denkbar, wenn die charakteristischen Defekte jeweils in Paaren auftreten, oder der einzelne Defekt durch die äußere Anregung nichtlinearen Prozessen, wie beispielsweise einem Kaskadenzerfall unterliegt. Dieser zweite Zerfall erzeugt analog zum ersten ein weiteres Phononen Seitenband. Tatsächlich beträgt der energetische Abstand zwischen den Linien 2 und 4, gemittelt über alle beobachteten Emitter $\Delta E_{24} = 173,7 \pm 14,7 \text{ meV}$. Innerhalb der Fehlergrenzen entspricht auch diese Verschiebung der Phononen Mode bei 1366 cm^{-1} (169 meV) des Kristallgitters. Im Rahmen der Diskussion der zeitlichen Dynamik des Systems und Tieftemperaturmessungen werden wir die Annahme, dass es sich bei den untersuchten Emitttern tatsächlich nicht um reine Einzelphotonenquellen, sondern um zwei unabhängige elektronische Zerfälle handelt, erneut detailliert aufgreifen.

4.2.3 Intensitätskorrelationsmessungen

Im Folgenden untersuchen wir die Relaxationsdynamik sowie Photonenstatistik der betrachteten Emitter durch Messung der $g^{(2)}$ -Intensitätskorrelation. Die Analyse der $g^{(2)}$ Funktionen erfolgt entsprechend der Beschreibung in Abschnitt 3.3. Diese Messungen werden die im letzten Abschnitt getroffene Annahme, dass es sich bei diesen Defekten nicht um einfache Einzelphotonenquellen handelt, untermauern. Abbildung 4.9b) zeigt zunächst eine leistungsabhängige Messung der Emissionsrate an einem Emitter (Sättigungsmessung), dessen Spektrum in Abbildung 4.9a) dargestellt ist. Die Zählrate I in Abhängigkeit der Anregungsleistung P wurde hierfür im Wellenlängenbereich zwischen 600 nm und 700 nm integriert. Die Daten sind angepasst gemäß

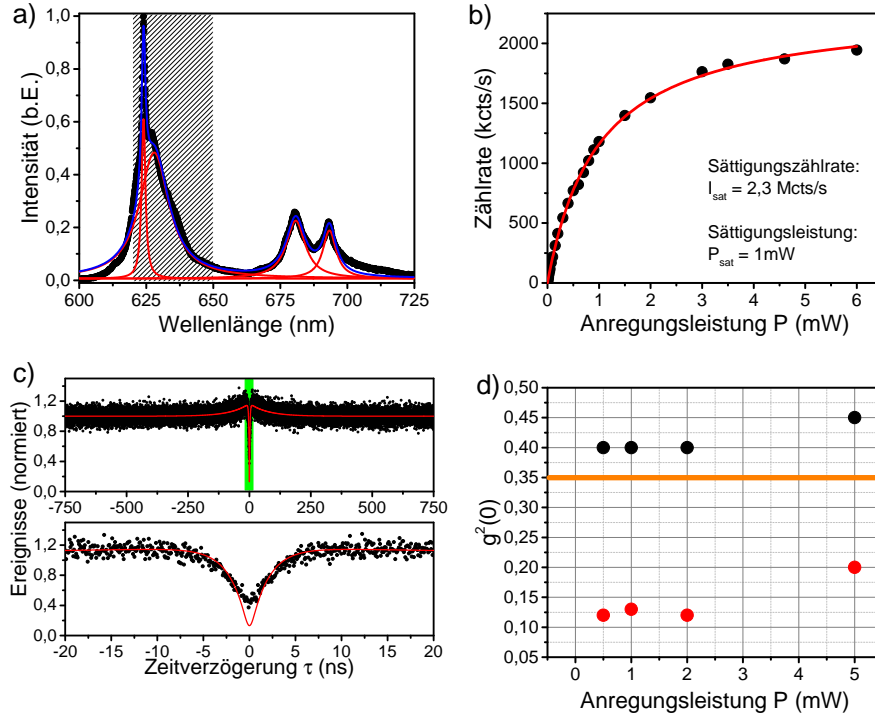


Abbildung 4.9: a) Spektrum eines Quantenemitters in einer Multilagen Flocke hBN. Grün markiert ist der Wellenlängenbereich (620-650 nm), in dem Photonen für die Intensitätskorrelationsmessung in c) aufgesammelt wurde. b) Sättigungsmessung an dem Emitter aus a). Anpassung liefert eine Sättigungszählrate von $I_{\text{sat}}=2,3 \text{ Mcts/s}$ und eine Sättigungsleistung von $P_{\text{sat}}=1 \text{ mW}$. Darüberhinaus ist kein linearer Anteil in der leistungsabhängigen Messung sichtbar, der auf unkorrelierten Untergrund aus dem Wirtsmaterial hindeutet. c) $g^{(2)}$ -Intensitätskorrelationsmessung an dem Emitter aus a). Die rote Kurve ist eine Anpassung der Daten gemäß Gleichung 4.2. Die Anpassung kann die Daten um $\tau=0$ nicht reproduzieren (Für Diskussion: siehe Text). d) Unterschiede zwischen den gemessenen Werten für die $g^{(2)}$ -Funktion bei $\tau=0$ (Schwarze Punkte) und den Werten aus einer Anpassung der jeweiligen Daten gemäß Gleichung 3.27 (Rote Punkte). (Für Diskussion: siehe Text)

$$I(P) = \frac{I_{\text{sat}} \cdot P}{P_{\text{sat}} + P} + c_b \cdot P \quad (4.2)$$

wobei I_{sat} die Sättigungszählrate aus dem Emitter und P_{sat} die Sättigungsleistung darstellen. c_b modelliert Untergrundfluoreszenz aus dem Wirtsmaterial, die üblicherweise linear mit der Anregungsleistung ansteigt. Anpassung der Daten gemäß Gleichung 4.2 liefert jedoch einen negativen Untergrundanteil. Dies lässt darauf schließen, dass in der Messung im Prinzip kein linearer Untergrund vorhanden ist, der modellierte negative

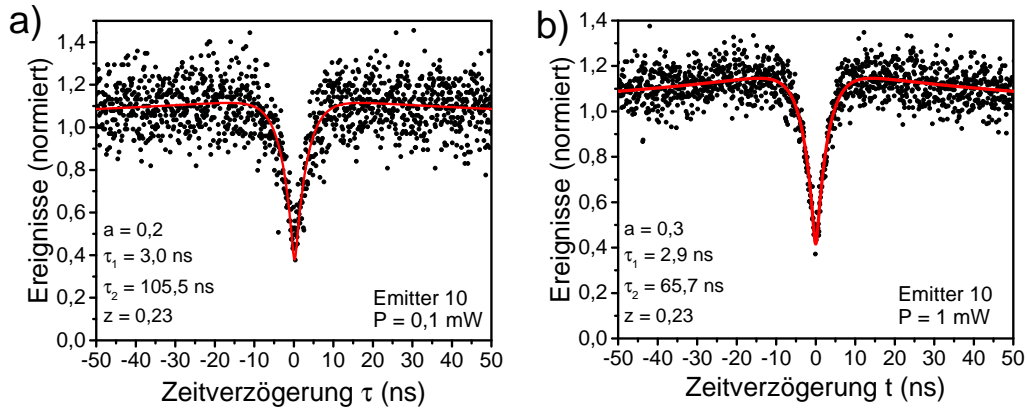


Abbildung 4.10: Intensitätskorrelationsfunktionen für Emitter 10 bei zwei verschiedenen Anregungsleistungen $P = 0,1 \text{ mW}$ und $P = 1 \text{ mW}$. Die roten Kurven sind Anpassungen gemäß Gleichung 4.5. Erst durch die unabhängige Information der Oszillatorstärken aus dem entsprechenden Spektrum wird eine korrekte Anpassung möglich.

Untergrund jedoch dadurch zu Stande kommt, dass die Anpassungsfunktion etwaige statistische Fehler in den Datenpunkten auszugleichen versucht. Die Sättigungszählrate liegt mit etwa 2,3 Millionen Photonen pro Sekunde im für diese Quantenemitter typischen Bereich [64–66]. Für die Messung der $g^{(2)}$ -Funktion schränken wir das Intervall, in dem Photonen aufgesammelt werden, auf den Bereich von 620 nm–650 nm weiter ein. Obwohl die Auswertung der Sättigungsmessung darauf schließen lässt, dass es sich bei allen emittierten Photonen lediglich um echte Photonen aus dem Emitter handelt, reduziert die Eingrenzung auf einen kleineren Wellenlängenbereich die Wahrscheinlichkeit, dennoch einen Teil Untergrundfluoreszenz aus dem Wirtsmaterial zu sammeln, deutlich. Beispielhaft zeigt Abbildung 4.9c) eine solche Messung bei einer Anregungsleistung von $P=1 \text{ mW}$. Die Daten wurden gemäß der Beschreibung in Abschnitt 3.3 normiert. Die rote Kurve ist eine Anpassung der Daten gemäß der $g^{(2)}$ Funktion für ein 3-Niveau System gemäß Gleichung 3.27. Es ist ersichtlich, dass die Daten für große Zeitverzögerungen τ , insbesondere im Bereich des Bunchings korrekt wiedergegeben werden. Es ist jedoch auffallend, dass dies für Zeitverschiebungen um $\tau=0$ nicht der Fall ist. Konkret verlangt die Anpassung für einen einzelnen Emitter ein deutlich tieferes $g^{(2)}(0)$, als es die Daten widerspiegeln. In Abschnitt 3.3 haben wir alle Ursachen diskutiert, die auch für einen idealen Einzelemitter in Festkörpersystemen zu einem nicht idealen Wert von $g^{(2)}=0$ führen können. Durch die Sättigungsmessung konnte bereits unkorrelierte Untergrundfluoreszenz aus dem Wirtsmaterial ausgeschlossen werden. Gemäß Gleichung 4.2 steigt die Intensität der Untergrundfluoreszenz linear mit der Anregungsleistung. Entsprechend müsste sich auch der Wert von $g^{(2)}(0)$ mit steigender Anregungsleistung erhöhen. Messungen bei $P=2 \text{ mW}$; 3 mW und 5 mW sind in Abb. 4.9d) dargestellt. Die schwarzen Punkte zeigen die gemessenen Werte für $g^{(2)}(0)$, während die roten Punkte

die Werte für $g^{(2)}(0)$ angeben, die eine Anpassung gemäß Gleichung 3.27 an die Daten ausbildet. Insbesondere ist zu sehen, dass trotz deutlich steigender Anregungsleistung die experimentell gemessenen Werte für $g^{(2)}(0)$ annähernd konstant sind. Ein weiterer deutlicher Hinweis darauf, dass keine lineare Untergrundfluoreszenz detektiert wird.

Wie zuvor erwähnt, sammeln wir zur Messung der $g^{(2)}$ -Funktion Photonen im Bereich von 620 nm-650 nm. In diesem Bereich wird das Spektrum durch zwei Lorentzkurven reproduziert. Bereits im letzten Abschnitt wurde diskutiert, dass es sich, entgegen der Auffassung in der Literatur, bei beiden Linien um unabhängige elektronische Übergänge handeln könnte. Das Verhältnis der Oszillatorstärke (Flächen unter den Kurven) bestimmt gemäß Gleichung 3.30 in diesem Fall den Wert für $g^{(2)}(0)$. Aus der Anpassung des Spektrums erhalten wir $z = A_1/A_{\text{ges}} = 0,23$ und damit einen minimalen Wert $g^{(2)}(0) = 0,35$ (orangene Linie in Abbildung 4.9d) in bemerkenswert guter Übereinstimmung mit den tatsächlich gemessenen Werten. Um nicht nur den Wert für $g^{(2)}(0)$ zu erklären, sondern die Messdaten insgesamt anzupassen nutzen wir eine modifizierte $g^{(2)}$ -Funktion für zwei vollständig unabhängige Emmitter. Diese ergibt sich gemäß Abschnitt 3.3 zu:

$$g^{(2)}(\tau) = z^2 \cdot g_1^{(2)}(\tau) + (1-z)^2 \cdot g_2^{(2)}(\tau) + 2z(1-z), \quad (4.3)$$

wobei $g_1^{(2)}(\tau)$ und $g_2^{(2)}(\tau)$ die jeweiligen Einzelfunktionen beider Emmitter sind, für die wir $g_i^{(2)}(0)=0$ setzen. z bezeichnet das Verhältnis der Oszillatorstärken, die wir aus den Lorentzanalysen der jeweiligen Spektren gewinnen. Da wir momentan keine exakte Aussage darüber treffen können, inwiefern sich die Zeitkonstanten beider Emmitter unterscheiden, treffen wir im Folgenden vereinfacht die Annahme, dass $\tau_1^1 = \tau_1^2$, $\tau_2^1 = \tau_2^2$ und $a_1 = a_2$. Damit vereinfacht sich Gleichung 4.3 zu

$$g^{(2)}(\tau) = (1 - 2z(1-z))g_1^{(2)}(\tau) + 2z(1-z) \quad (4.4)$$

Für den in Abbildung 4.9 diskutierten Emmitter erhalten wir somit

$$g^{(2)}(\tau) = 0,65 \cdot g_1^{(2)}(\tau) + 0,35 \quad (4.5)$$

Abbildung 4.10 zeigt zwei Korrelationsfunktionen an diesem Emmitter bei Anregungsleistungen $P = 0,1 \text{ mW}$ und $P = 1 \text{ mW}$ mit Anpassungen gemäß Gleichung 4.5. Neben der nun korrekten Anpassung um $g^{(2)}(0)$ wird nun insbesondere auch die Antibunching-Zeitkonstante korrekt wiedergegeben, was zuvor in Abbildung 4.9c) und der Anpassung gemäß einer $g^{(2)}$ -Funktion für einen einzelnen Emmitter noch nicht der Fall war. In Abbildung 4.11 ist dies für drei weitere Emmitter gezeigt. Eine korrekte Anpassung der Korrelationsfunktionen ist auch in diesen Fällen nur möglich, wenn die jeweiligen Oszillatorstärken berücksichtigt werden. In den Spektren in Abbildung 4.11a),d),g) der jeweiligen Emmitter sind die Bereiche, aus denen Photonen für die $g^{(2)}$ -Messungen gesammelt wurden schraffiert dargestellt. Die Flächenverhältnisse der Lorentzkurven in den markierten Bereichen sind in den Abbildungen 4.11c,f,i) jeweils angegeben ($z=0,46$; $z=0,28$; $z=0,7$).

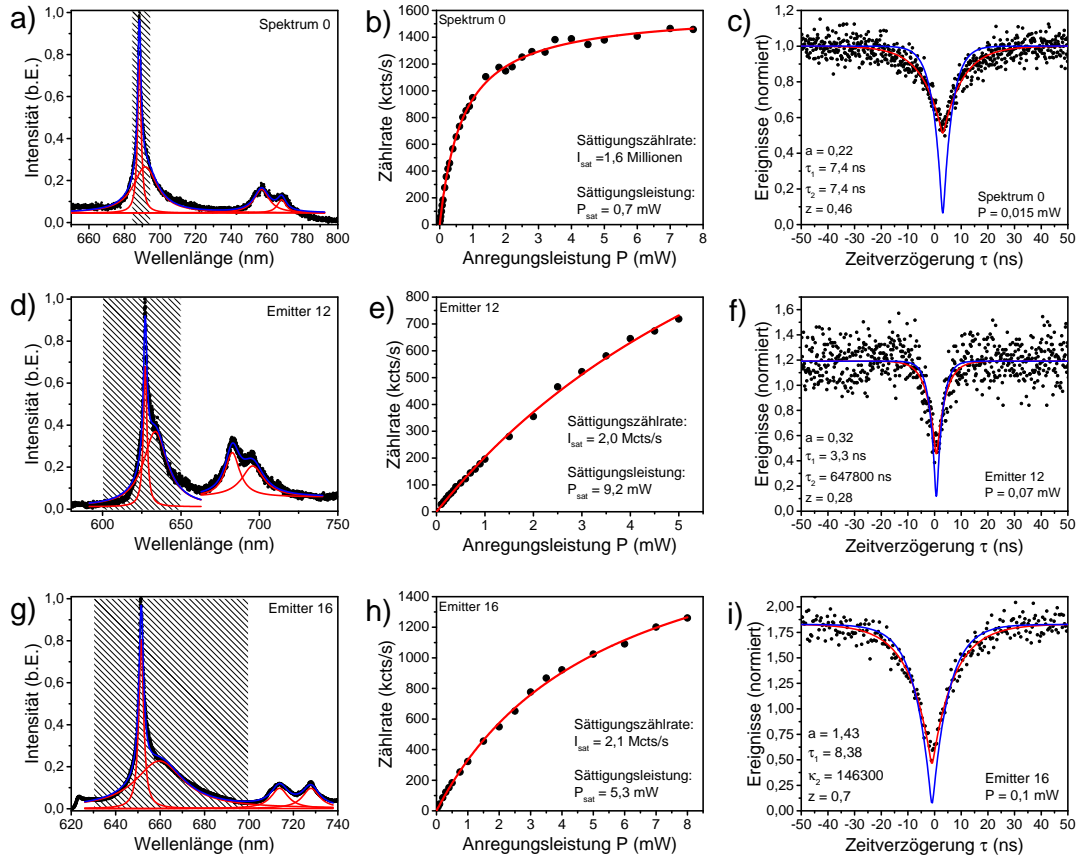


Abbildung 4.11: *a, d, g*) 3 typische Spektren gemessenen an Multi-Lagen Flocken hBN. Die markierten Bereiche stellen die Wellenlängenbereiche dar, in denen Photonen für die jeweiligen g^2 -Messungen (jeweils rechts) gesammelt wurden. *b, e, h*) Sättigungsmessungen zu den gezeigten Spektren. Anpassungen an die Messpunkte liefert für alle drei Messungen keinen linearen Untergrundanteil. *c, f, i*) Messungen der g^2 -Funktion bei deutlich kleineren Anregungsleistungen als die jeweiligen Sättigungsleistungen. Blaue Kurven: Fit gemäß der Drei-Niveau-Funktion für einen einzelnen Emitter ohne Untergrundanteil. Rote Kurve: Fit gemäß der Drei-Niveau-Funktion für zwei unabhängige Emitter ohne Untergrundanteil unter Berücksichtigung der relativen Oszillatorstärken beider Übergänge aus dem Spektrum.

Wie bereits für die Abbildungen 4.9 und 4.10 diskutiert, lässt sich auch hier erkennen, dass das Modell gemäß Gleichung 3.27 für einen einzelnen Emitter die gemessenen Daten nur unzureichend wiedergibt (blaue Kurve). In allen Fällen führt das auf zwei unabhängige Emitter erweiterte Modell gemäß Gleichung 4.4 zu einer perfekten Übereinstimmung. Es soll an dieser Stelle erwähnt werden, dass eine Anpassung der Daten gemäß der $g^{(2)}$ -Funktion für einen einzelnen Emitter natürlich möglich ist, wenn das

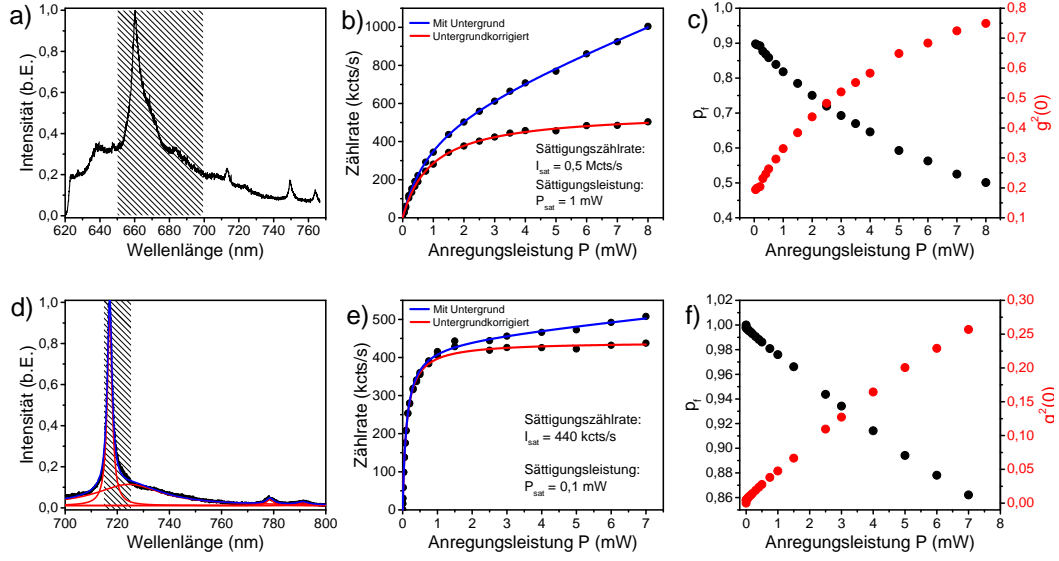


Abbildung 4.12: a) Spektrum eines Emitters in einer Multilagen Flocke hBN mit deutlichem Untergrundanteil. b) Sättigungsmessung an dem Spektrum aus a), in der sich der bereits beobachtbare starke Untergrundanteil bestätigt. c) Verhältnis der Gesamtzählrate zur Untergrundkorrigierten Zählrate für alle zur Sättigungsmessung verwendete Leistungen. d) Reines Spektrum aus einer Multilagen Flocke. e) Sättigungsmessung an dem Emitter aus d). e) Erst ab Anregungsleistungen um $25 \times P_{\text{sat}}$ entsteht ein Untergrundanteil von etwa 5%.

Signal-zu-Untergrund-Verhältnis als Fitparameter frei gelassen wird. Aus zwei Gründen ist dies allerdings für die bisher präsentierten Resultate physikalisch nicht sinnvoll. Zum einen wurde Untergrund ursprünglich ausgeschlossen, weil die Anpassung an die Daten der Sättigungsmessungen keinen linearen Untergrundanteil zeigen. Es lässt sich argumentieren, dass die hier verwendeten Anregungsleistungen bis maximal 10 mW nicht ausreichen, um diesen linearen Anstieg entsprechend sichtbar zu machen (vgl. insbesondere Abbildung 4.11e). Jedoch sind die in den bislang gezeigten $g^{(2)}$ -Funktionen verwendeten Anregungsleistungen mit bis herunter zu $15 \mu\text{W}$ deutlich zu gering, um die sehr stark von $g^{(2)}(0)=0$ abweichenden, gemessenen Werte durch Untergrund zu erklären. Zur Verdeutlichung sind in Abbildung 4.12 Messungen an zwei weiteren Emitttern gezeigt, die einen tatsächlichen Untergrundanteil aufweisen. Besonders hervorzuheben sind hierbei die Abbildungen 4.12a-c). Im Unterschied zu den sehr rein aussehenden Spektren in den Abbildungen 4.10 und 4.11 ist hier bereits im Spektrum Untergrund erkennbar, der sich ebenfalls deutlich in der Sättigungsmessung zeigt. Hier sind $g^{(2)}(0)$ -Werte bereits bei sehr geringen Anregungsleistungen von etwa $50 \mu\text{W}$ durch reine Untergrundfluoreszenz auf minimal $g^{(2)}(0)=0,2$ limitiert. Für hohe Anregungsleistungen bis 8 mW können nur noch minimale Einbrüche bis $g^{(2)}(0)=0,75$ erwartet werden. In diesem Fall ist die Bestimmung der Oszillatorstärken beider Übergänge durch Anpas-

sung des Spektrums nicht zuverlässig. Setzt man im Umkehrschluss jedoch das Signal zu Untergrund Verhältnis fest und behandelt die Oszillatorstärken als freien Parameter liefert dies in diesem konkreten Fall ein Verhältnis von $z=0,25$, welches typischen Werten aus den obigen Spektren entspricht. Im Unterschied dazu zeigt Abbildung 4.12d) den Fall, dass in sehr reinen Spektren Untergrund erst ab Anregungsleistungen eine Rolle spielt, die sehr viel größer sind, als die Sättigungsleistungen des Emitters. Erst ab einer Anregungsleistung von $25 \times P_{\text{sat}} = 2,5 \text{ mW}$ wird der minimale Einbruch auf $g^{(2)}(0)=0,1$ limitiert. Tatsächlich wurde in diesem Fall bereits bei $P_{\text{exc}}=3,5 \mu\text{W}$ ein $g^{(2)}(0)>0,4$ gemessen. Auch in diesem Fall konnte nur die Korrektur durch die Oszillatorstärken im markierten Wellenlängenbereich in Abbildung 4.12d) die gemessene Korrelationsfunktion zufriedenstellend erklären.

4.2.4 Lebensdauermessungen der angeregten Zustände

Weitere Information über die angeregten Zustände gewinnen wir über eine direkte Messung der Lebensdauern. Die Emitter werden dazu mittels einer Kontinuumsquelle (Weißlichtlaser) gepulst angeregt ($\lambda=532 \text{ nm}$; Pulsdauer: 200 ps ; Pulsrate: 10 MHz). Abbildung 4.13 zeigt Lebensdauermessungen an zwei hBN Emittern. Die blauen und roten Kurven entsprechen Anpassungen der Messpunkte gemäß

$$L(x) = y_0 + \left(1 - \text{erf}\left(-\frac{t-t_0}{\sigma}\right)\right) \cdot \sum_{i=1}^n A_i \cdot e^{-\frac{t-t_0}{t_i}} \quad (4.6)$$

mit einer (blau, $n=1$) bzw. zwei (rot, $n=2$) Zeitkonstanten. Wir nehmen an, dass die Antwortfunktion des Messaufbaus durch eine Normalverteilung mit der Halbwertsbreite σ modelliert werden kann, wobei $\sigma=354 \text{ ps}$ vor allem durch die Zeitaufösung der verwendeten APDs limitiert ist [158, 174]. Die Faltung einer Summe von Monoexponentialzerfällen mit einer Normalverteilung liefert die Anpassungsfunktion 4.6. Hierbei sind σ der Jitter der Detektionseinheiten und t_i die Zeitkonstanten der exponentiellen Zerfälle.

Vor allem in Abbildung 4.13 wird deutlich, dass ein monoexponentieller Zerfall nicht im Stande ist, die Daten anzupassen. Biexponentielle Zerfälle können die Daten dagegen deutlich besser reproduzieren. Die Zeitkonstanten liegen mit $t_1=0,82 \text{ ns}$ ($t_1=1,66 \text{ ns}$) und $t_2=4,0 \text{ ns}$ ($t_2=4,5 \text{ ns}$) jeweils beide in der gleichen Größenordnung. Insbesondere sind diese Zeitkonstanten zu groß, um sie auf Untergrund aus dem Material zurückführen zu können. Tatsächlich liegen alle diese Werte im Bereich der auch in der Literatur berichteten Lebensdauern der angeregten Zustände dieser Emitter. Weiter entsprechen diese Zeitkonstanten den Lebensdauern, die wir in Abschnitt 4.2.5 aus den $g^{(2)}$ -Funktionen für verschwindende Anregungsleistung extrahieren können. Insgesamt fügen sich diese Ergebnisse in das Gesamtbild ein, dass tatsächlich zwei unabhängige Zerfälle in dem System stattfinden. Die in [64–66] gezeigten Lebensdauermessungen werden nur in einem linearen Bereich ausgewertet, vergleichbar mit Abbildung 4.13 im Bereich $10\text{--}25 \text{ ns}$. Somit wird explizit der Bereich ausgeschlossen,

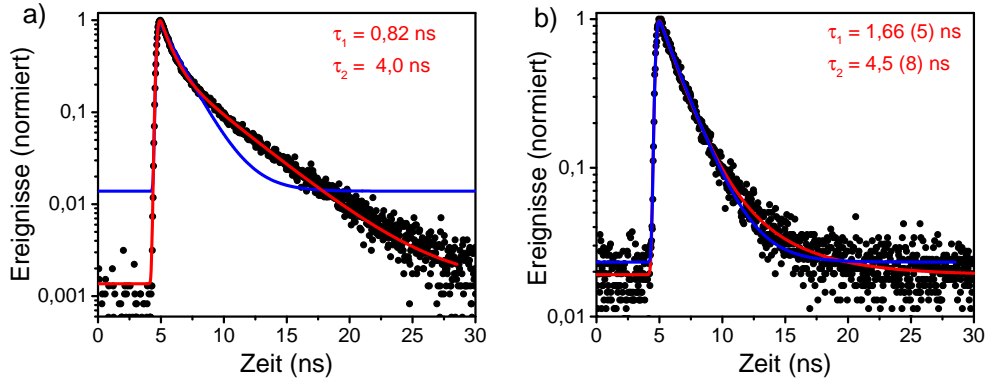


Abbildung 4.13: Messung der Lebensdauer der angeregten Zustände an zwei Emittern in hBN. Die blauen und roten Kurven sind Anpassungen gemäß Gleichung 4.6 mit einem einfachen exponentiellen Zerfall (blau) und einem biexponentiellen Zerfall (rot). Die Messdaten werden durch die biexponentiellen Zerfälle deutlich besser wiedergegeben.

welche die kurze Zeitkonstante, sowie den Detektorjitter enthält. Ein direkter Vergleich der hier durchgeführten Messungen und extrahierten Lebensdauern mit der Literatur ist dadurch nicht möglich.

4.2.5 Weitere Involvierte Zeitkonstanten

Über leistungsabhängige Messungen der $g^{(2)}$ -Funktionen soll in diesem Abschnitt auf die interne Dynamik der hBN Emitter, insbesondere auf den Einfluss metastabiler Zustände zwischen den beteiligten Grund und angeregten Zuständen eingegangen werden. In Abbildung 4.14 sind an vier Beispielen die Entwicklung der Zeitkonstanten τ_1 , τ_2 und des Bunching Parameters a der $g^{(2)}$ -Funktionen in Abhängigkeit der Anregungsleistungen gezeigt. Die roten Kurven sind Anpassungen der Datenpunkte gemäß der Gleichungen 3.11-3.13. Es ist zu betonen, dass zur Anpassung der leistungsabhängigen $g^{(2)}$ -Messungen wie auch in den obigen Abschnitten die Zeitkonstanten der beiden vermuteten unabhängigen Emitter in Ermangelung näherer Informationen als jeweils gleich angenommen sind um die Anzahl der Anpassungsparameter so gering wie möglich zu halten. Folgendes wird deutlich:

- für verschwindende Anregungsleistungen konvergieren die Werte für τ_1 gegen Zeiten zwischen etwa 1-10 ns. In diesem Modell beschreibt τ_1 für $P \rightarrow 0$ die Lebensdauer der elektronischen angeregten Zustände. Diese Zeiten stimmen mit in der Literatur direkt gemessenen Lebensdauern überein.
- für verschwindende Anregungsleistungen beschreibt die Zeit τ_2 die Lebensdauer des metastabilen Zustandes. In den gezeigten Beispielen variieren diese Le-

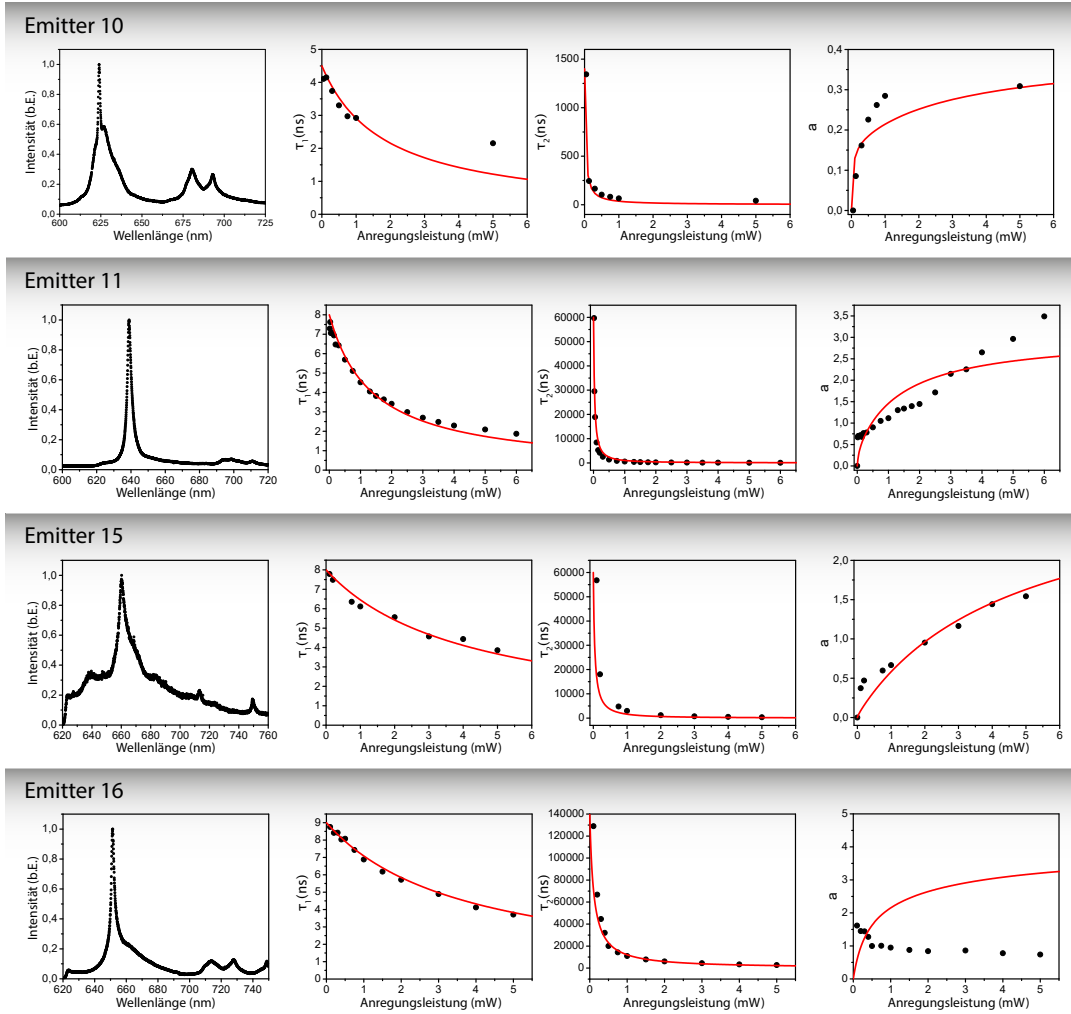


Abbildung 4.14: Aus den leistungsabhängig gemessenen $g^{(2)}$ -Funktionen extrahierte Zeitkonstanten τ_1 , τ_2 und a für die Emittter 10,11,15 und 16 und Anpassungen (rote Linien) gemäß des in Kapitel 3.3 vorgestellten Modells. Das bereits für SiV-Zentren erfolgreich angewandte Modell der leistungsabhängigen Entvölkerung des metastabilen Zustandes kann offenbar auch auf die hier vorliegenden Emittter angewandt werden [158].

bensdauern zwischen $1,5 \mu\text{s}$ und $140 \mu\text{s}$. Tatsächlich konnten noch deutlich höhere Bunchingzeiten gemessen werden (siehe unten).

- der Parameter a ist gemäß Abschnitt 3.3 ein Maß für die Stärke des Bunchings der $g^{(2)}$ -Funktion. Ein Vergleich der drei entsprechenden Graphen in Abbildung 4.14 zeigt auch hier eine Variation über mehr als eine Größenordnung.

	Emitter 10	Emitter 11	Emitter 15	Emitter 16
I_{sat} [kcts/s]	2300	1600	557	2100
P_{sat} [mW]	1,0	0,7	1,0	5,3
τ_1^0 [ns]	4,5	8	8	9
τ_2^0 [ns]	1400	60000	60000	140000
k_{21} [MHz]	214	124,8	124,9	110,9
σ [MHz/mW]	110	90	29	32
λ [MHz/mW]	22	0,375	0,065	0,02
μ [MHz/mW]	6,6	1,13	0,2	0,08

Tabelle 4.1: Aus den leistungsabhängig gemessenen g^2 -Funktionen extrahierte Zeitkonstanten τ_1 , τ_2 und a für die Emitter 10,11,15 und 16 und Anpassungen (rote Linien) gemäß des in Kapitel 3.3 vorgestellten Modells. Außerdem sind die jeweiligen Sättigungszählraten I_{sat} und Sättigungsleistungen P_{sat} der Emitter angegeben.

Offensichtlich kann das Modell die den $g^{(2)}$ -Funktionen entnommenen Zeitkonstanten reproduzieren. Die aus den Anpassungen extrahierten Konstanten für die gezeigten Emitter sowie deren Sättigungszählraten I_{sat} und Sättigungsleistungen P_{sat} sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. In Abbildung 4.15c) sind für insgesamt 14 untersuchte Emitter jeweils die Zeitkonstanten τ_1^0 und τ_2^0 , die aus den jeweils aufgenommenen $g^{(2)}$ -Funktionen für verschwindende Anregungsleistungen extrahiert wurde, gegen die Zentralwellenlängen der Emitter aufgetragen. Während sich die Lebensdauern der angeregten Zustände in einem engen Intervall zwischen 1-10 ns bewegen, verteilen sich die Lebensdauern der metastabilen Zustände über mehrere Größenordnungen von ca. 1 μ s bis ca. 1 ms. Der augenscheinliche Häufungspunkt zwischen $\lambda=620$ nm bis $\lambda=650$ nm ist eine Folge der Filterung in diesem Wellenlängenbereich im Hinblick auf die späteren Resonatorkopplungsexperimente. Tatsächlich finden sich im Bereich zwischen 600 nm und 700 nm verteilt typische Emissionslinien. Bereits hier ist aber zu erkennen, dass die Zentralwellenlänge keinen Einfluss auf die Lebensdauern der metastabilen Zustände zu haben scheint.

Offenbar besteht jedoch eine starke Abhängigkeit zwischen der Anregungsleistung und der Entvölkerung der metastabilen Zustände. Ein solches Verhalten zeigen beispielsweise auch SiV-Zentren in Nanodiamanten [20, 63, 157, 158]. Abbildungen 4.15a,b) zeigen Langzeitaufnahmen zweier $g^{(2)}$ -Funktionen an zwei unterschiedlichen Emittern, in denen Ereignisse bis zu Zeitverzögerungen von 30 ms miteinander korreliert wurden. Zur besseren Veranschaulichung sind die Daten doppellogarithmisch aufgetragen. Im Unterschied zu obigen Fällen lassen sich hier mehrere metastabile Zustände identifizieren. Um die entsprechenden Zeitkonstanten zu extrahieren, passen wir die jeweiligen Daten mit Linearkombinationen exponentieller Zerfälle gemäß Gleichung 4.7 an.

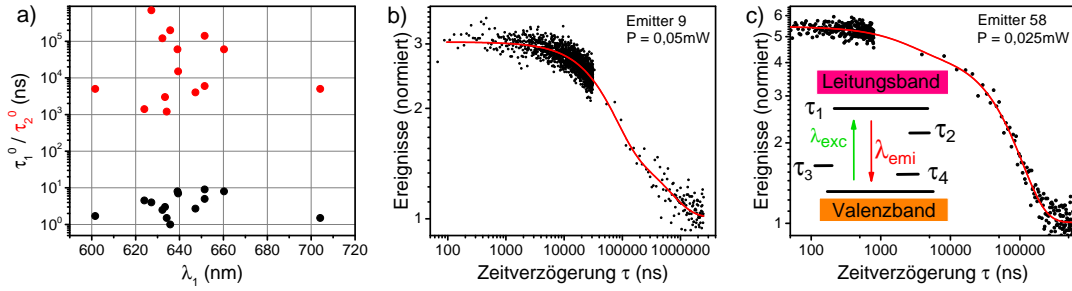


Abbildung 4.15: *a)* Lebensdauern der angeregten Zustände und der metastabilen Zustände extrahiert aus $g^{(2)}$ -Funktionen für verschwindende Anregungsleistung für 14 Emitter. *b,c)* Langzeit Aufnahme einer $g^{(2)}$ -Funktion bis $\tau \approx 30$ ms. Die rote Kurve ist ein Fit gemäß eines biexponentiellen Zerfalls. Beim Zerfall vom angeregten in den Grundzustand sind demnach Übergänge über mindestens 2 metastabile Zustände möglich. Die Grafik stellt dies schematisch dar.

$$t(\tau) = y_0 + \sum_{i=2}^n A_i \cdot e^{-(\tau+\tau_0)/\tau_i} \quad (4.7)$$

Ein exponentieller Zerfall mit nur einer einzigen Zeitkonstante kann die Daten nicht korrekt wiedergeben. Aus diesem Grund verwenden wir für beide Messungen sowohl einen biexponentiellen Zerfall, sowie einen triexponentiellen Zerfall. Die jeweiligen ausgegebenen Zeitkonstanten sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Beachte, dass es sich bei den Zeitkonstanten um Bunchingzeitkonstanten handelt, die Indizierung daher bei $i=2$ beginnt, um Konsistenz mit der Notation in obigen Abschnitten zu gewährleisten. Außerdem sind in Tabelle 4.2 die aus den Anpassungen erhaltenen Summen der Fehlerquadrate χ^2 gelistet. Unabhängig von der Wahl der Anzahl der Zeitkonstanten sind diese für beide Emitter gleich. Darüber hinaus gilt:

- **Emitter 9:**
In beiden Fällen erhält man zwei Zeitkonstanten von etwa $60 \mu\text{s}$ und $600 \mu\text{s}$. Eine dritte Zeitkonstante liefert zusätzlich $0,8 \mu\text{s}$. Ob es sich dabei um einen echten Zwischenzustand handelt, kann mit den vorliegenden Informationen nicht abschließend geklärt werden.
- **Emitter 58:**
In beiden Fällen erhält man zwei Zeitkonstanten von etwa $2 \mu\text{s}$ und $60 \mu\text{s}$. Die dritte Zeitkonstante würde einen Wert von $113 \pm 80 \mu\text{s}$ liefern. Der sehr große Fehler ist in diesem Fall ein Ausschlusskriterium für einen dritten Zustand.

Insgesamt lässt diese Betrachtung auf insgesamt zwei metastabile Zwischenzustände mit Zeitkonstanten von jeweils einer Größenordnung Unterschied schließen. Die Beobachtung mehrerer metastabiler Zustände wird in der Literatur häufiger berichtet,

jedoch ist man sich uneinig über die Anzahl der Zustände und die tatsächlichen Zeitkonstanten [65, 66]. Die in dieser Arbeit getroffenen Beobachtungen zeigen, dass zur Beschreibung der Mehrzahl aller Emitter bereits eine einzelne Bunchingzeitkonstante zur Beschreibung der Dynamik genügt (vgl. Abschnitt 4.2.5).

	Emitter 9		Emitter 10	
	2 e-Fkt.	3 e-Fkt.	2 e-Fkt.	3 e-Fkt.
τ_2 [μ s]	$58 \pm 0,6$	$0,8 \pm 0,08$	$2,3 \pm 0,2$	$2,1 \pm 0,2$
τ_3 [μ s]	575 ± 23	$61 \pm 0,5$	$67 \pm 1,2$	54 ± 15
τ_4 [μ s]	-	634 ± 30	-	113 ± 80
χ^2	0,018	0,018	0,04	0,04

Tabelle 4.2: Bunchingzeitkonstanten für zwei unterschiedliche Emitter. Die Werte sind entnommen aus Anpassungen an $g^{(2)}$ -Funktionen für sehr große Zeitverzögerungen in Abbildung 4.15. Die Anpassung erfolgte gemäß Gleichung 4.7 für beide Emitter jeweils mit biexponentiellen und triexponentiellen Zerfällen. Da die Fehlergrenzen für Zerfälle mit drei Zeitkonstanten sehr groß werden folgern wir, dass der Zerfall über zwei metastabile Zustände stattfindet.

4.2.6 Blinken und Photostabilität

Die Nutzung einzelner Photonen für technische Anwendungen bedingt insbesondere eine über die Zeit stabile Zählrate. Perfekte Photostabilität erreicht ein Emitter, wenn er zu jeder Zeit unter beliebigen Umgebungsbedingungen konstante Zählrate zeigt. Wenn wir beobachten, dass ein zuvor strahlender Emitter keine Emission unter kontinuierlicher Anregung mehr zeigt, sagen wir, der Emitter ist spontan ausgebliken. Fluktuationen in der Emissionsrate werden Blinken genannt.

Beide Phänomene konnten bislang an nahezu allen Emittersystemen beobachtet werden. Dazu gehören einzelne Farbstoffmoleküle [181, 182], Farbzentren in Diamant [63, 158, 183, 184] Halbleiter Quantenpunkte [185–187] und weiteren Defekten in Materialien mit großen Bandlücken [188–190]. Tran et al untersuchen in [64] und [66] die Photostabilität von Defekten in 2D und 3D hBN. Sie zeigen, dass Emitter in 2D Material bis zu 10 Minuten photostabil sein können und geben an, dass diese in dieser Zeit konstante Zählrate zeigen. Jedoch zeigt der von ihnen untersuchte Emitter über den gesamten Zeitraum eine Zählrate von 2 ± 1 Mcts/s, was auf stark instabile Zählrate hindeutet. In 3D hBN finden sie starkes Blinken ihrer Emitter, die darüberhinaus ein deutlich unterschiedliches Spektrum zum 2D Fall zeigen. Jedoch sollen auch diese Emitter über einen nicht näher definierten langen Zeitraum hohe Photostabilität aufweisen. Martinez et al messen von Emitter zu Emitter deutlich unterschiedliches zeitliches Verhalten der Zählrate in Bulk hBN [67]. Auf Zeitskalen von 40 Sekunden sehen sie bei einer Anregungsleistung von $P=10 \mu$ W Emitter

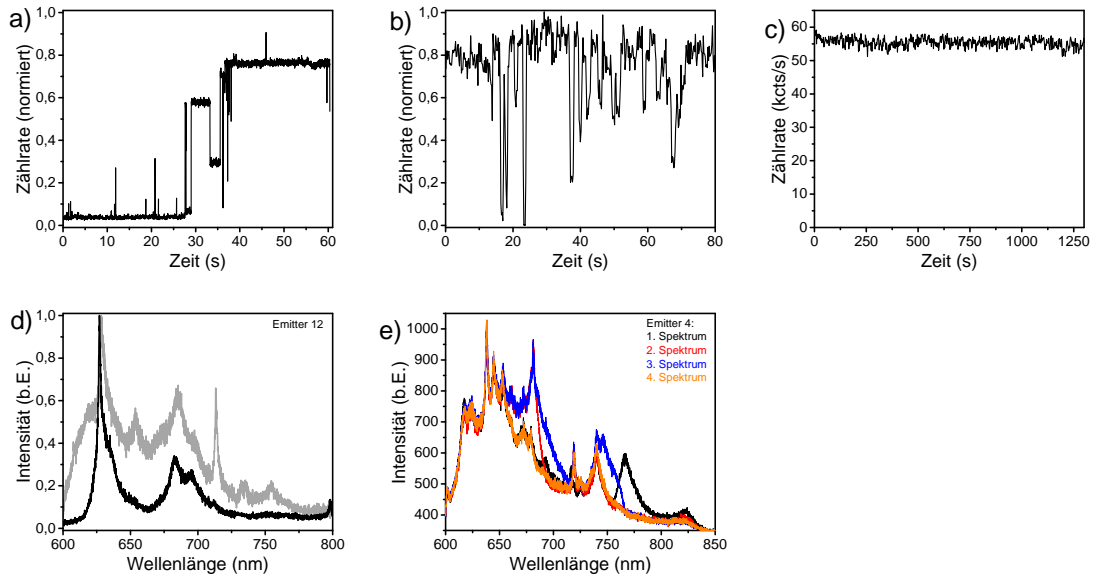


Abbildung 4.16: *a,b,c*) Drei beispielhafte Situationen für die zeitliche Entwicklung der Emissionsrate unterschiedlicher Emittor unter nicht resonanter Anregung. Zwischen der verwendeten Anregungsleistung und dem entsprechenden Verlauf konnte kein allgemeiner Zusammenhang festgestellt werden. Die meisten Emittor bleichen in einem Zeitraum zwischen mehreren Minuten und mehreren Stunden unabhängig vom Blink-Verhalten zufällig und spontan aus. Dies bestätigt die Beobachtungen in [67]. *d*) Zwei aufeinanderfolgende Spektren am gleichen Emittor. Hat sich der Ladungszustand des Defekts stabilisiert, kann ein typischer hBN Emittor identifiziert werden (schwarz). Die dominanten Linien sind bereits im vorherigen Spektrum sichtbar (grau). *e*) Vier aufeinanderfolgende Spektren am gleichen Emittor. Über die Zeit erscheinen zufällig verteilte Linien. Ein klarer Hinweis auf Multi-Level Blinken und vermutlich durch den Anregungslaser hervorgerufene Ladungsträgerfluktuationen.

- mit schneller, permanenter Schwankung in der Zählrate (ca. 15 ± 8 kcts, vergleichbar mit der Messung in [64])
- die sich hauptsächlich in einem Dunkelnzustand befinden und jeweils nur kurz in einen leuchtenden Zustand übergehen
- die sich hauptsächlich in einem leuchtenden Zustand befinden und jeweils nur kurz in Dunkelnzustände übergehen
- die über die gesamte Messzeit stabile Zählrate zeigen.

Diese deutlich unterschiedlichen Resultate lassen darauf schließen, dass die Blink-Zyklen sehr stark mit der lokalen Umgebung des Defektes zusammenhängen. Eine mögliche Ur-

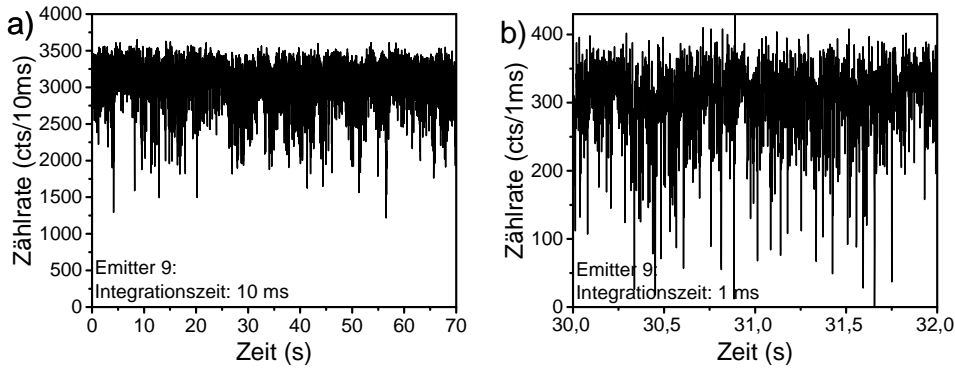


Abbildung 4.17: Zeitliche Entwicklung der Zählrate von Emitter 9 (vgl. Abb. 4.15) bei nicht-resonanter Anregung. Die Zählraten sind integriert über 10 ms (a) und 1 ms (b). Für diesen Emitter konnten zwei Bunchingzeitkonstanten von etwa $60 \mu\text{s}$ und $600 \mu\text{s}$ identifiziert werden (vgl. Abb. 4.15b). Das beobachtete Blinken auf Millisekunden kann mit dem Übergang in den metastabilen Zustand mit $600 \mu\text{s}$ Lebensdauer identifiziert werden. Die Dunkelzählrate der Detektoren liegt bei etwa 70 cts/s.

sache dieses Blinkens liegt in optisch induzierten Ladungszustandswechseln durch Ionisation umliegender Defekte oder Ladungszustandswechsel der Defekte. Im Unterschied zu [64, 66] beobachten Sie darüberhinaus ein vollständiges Ausbleichen der meisten Emitter nach wenigen Minuten nicht resonanter optischer Anregung. Diese Resultate können im Rahmen dieser Arbeit bestätigt werden.

Abbildung 4.16 zeigt für drei Situationen die zeitliche Entwicklung der Zählrate aus verschiedenen Emittern bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. In 4.16a) ist sehr starkes Multi-Level-Blinken erkennbar, während der Emitter in 4.16b) häufiger in einen Dunkelzustand fällt. In obigem Abschnitt haben wir gesehen, dass die metastabilen Zustände Lebensdauern bis zu $600 \mu\text{s}$ besitzen. Auf diesen Zeitskalen kann demnach Blinken beobachtet werden (vgl. Abbildung 4.17). Tatsächlich zeigen die meisten Emitter, wie in 4.16c) gezeigt über die Zeit eine konstante Zählrate. Jedoch schließt dies nicht aus, dass Blinken auf sehr kurzen Zeitskalen im Bereich weniger μs stattfindet. Es muss allerdings bestätigt werden, dass die meisten Emitter unabhängig von ihrem vorherigen Verhalten niemals vollständige Photostabilität aufweisen. Unter kontinuierlicher nicht-resonanter Anregung konnte beobachtet werden, dass fast alle in dieser Arbeit beobachteten Emitter in einem Zeitraum zwischen wenigen Minuten und mehreren Stunden spontan und zufällig ausbleichen und sich auch nach längerer Wartezeit nicht wieder reaktivieren.

Interessanterweise kann das beschriebene Multi-Level-Blinken über mehrere Sekunden an aufeinanderfolgend aufgenommenen Spektren sichtbar gemacht werden. In Abbildung 4.16e) sind vier im Abstand von jeweils 30 Sekunden aufgenommene Spektren am gleichen Emitter gezeigt. Insbesondere im Wellenlängenbereich zwischen 650 nm und

800 nm erscheinen und verschwinden Spektrallinien in zufälliger Art und Weise. Ein weiteres Beispiel ist in Abbildung 4.16d) zu sehen. Hier konnte ein Emitter, der zunächst als Ensemble von Emittlern mit Untergrund eingestuft wurde, zu einem späteren Zeitpunkt als typischer hBN Emitter identifiziert werden. Eine mögliche Erklärung ist, dass sich zu einem späteren Zeitpunkt der Ladungszustand des Defektes stabilisiert hat und nun stabile Emission zeigte. Darüberhinaus konnte kein Zusammenhang zwischen Blinken und Ausbleichen der Emitter in den untersuchten Multilagen Flocken und sonstigen spektralen Eigenschaften wie Zentralposition der dominanten Spektrallinien oder deren Linienbreiten festgestellt werden. Die meisten beobachteten Emitter zeigen stabile Zählrate gemäß Abbildung 4.16c), jedoch bleichen auch diese meist nach unbestimmter Zeit und mit keiner erkennbaren Korrelation zur verwendeten Anregungsleistung aus. Dies entspricht den Beobachtungen von Martinez et al in [67]. Informationen über Schwankungen in der Zählrate auf Zeitskalen weniger μs zu gewinnen ist insofern herausfordernd, als dass Zählraten der Emitter im Bereich weniger μs sich dem Bereich der Dunkelzählraten der Photonendetektoren annähern. Man erhält daher sehr starke statistische Schwankungen, die nicht notwendigerweise auf tatsächliche metastabile Zustände mit Lebensdauern in diesen Bereichen hindeuten.

Dagegen konnte in Abbildung 4.15a) ein Emitter mit Lebensdauern metastabiler Zustände von etwa $60 \mu\text{s}$ und $600 \mu\text{s}$ identifiziert werden. Abbildung 4.17 zeigt für diesen Emitter die gemessene Photonen-zählrate für Integrationszeiten von 10 ms (a) und 1 ms (b). Starkes Blinken auf ms Skala ist erkennbar. Dieses Blinken lässt sich durchaus auf den Einfluss des langlebigen metastabilen Zustandes zurückführen. Die Dunkelzählrate der in dieser Messung verwendeten Detektoren betragen etwa 70 cts/s. Das System scheint in etwa der Hälfte aller Zyklen in den Dunkelzustand zu zerfallen.

4.2.7 Polarisation

Wir untersuchen die Polarisation der Defekte sowohl in Anregung als auch in Emission. In der Literatur wurden bereits Aussagen über die Polarisation der Defekte getroffen. So berichten Tran et al, dass es sich bei Anregungsdipol und Emissionsdipol jeweils um linear polarisierte, parallele Dipole mit Sichtbarkeiten von 86% bzw 71% handelt [64]. Exharos et al berichten von Sichtbarkeiten des Anregungsdipols in einem weiten Bereich zwischen 20% und 80%, während die entsprechenden Emissionsdipole annähernd ideale Sichtbarkeit aufweisen. Optimale Sichtbarkeit deutet daraufhin, dass die Emission über einen einzelnen Dipol in der Ebene des hBN stattfindet. Sie messen jedoch starke Abweichungen in den Anregungs und Emissionswinkeln zwischen 30° bis annähernd 90° [72]. Ähnliches beobachten ebenso Choi et al in [69]. Nicht optimale Sichtbarkeit des Anregungsdipols führen sie auf eine nicht optimale Übertragung des hBN auf das Substrat zurück. Vermutlich bilden die Flocken einen Winkel zur Probe und damit zum einfallenden Anregungsstrahl. Die Abweichung zwischen Anregungs- und Emissionsdipol ist vermutlich Folge einer Umverteilung der elektronischen Zustände nach der Anregung [69, 72]. Im Folgenden soll vor allem untersucht werden, ob die verschiedenen Anteile der Emissionsspektren unterschiedlich polarisiert sind und auch, ob sie

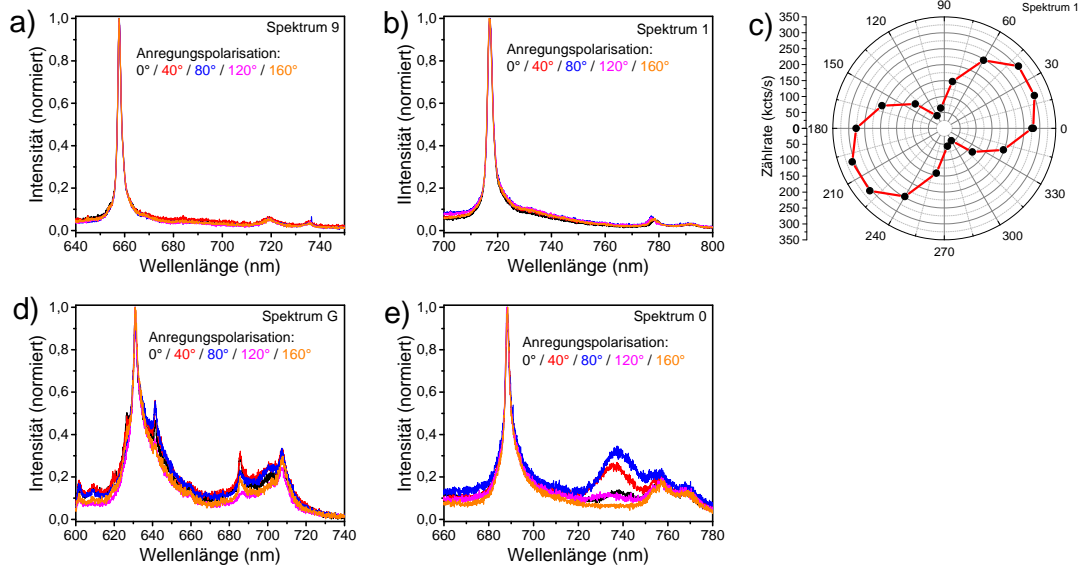


Abbildung 4.18: *a, b)* Auf die Stelle höchster Intensität normierte Spektren zweier Emittoren in hBN unter verschiedenen Anregungspolarisationswinkeln. Unabhängig vom Winkel der Anregung zeigen alle Spektren die gleiche Form. *c)* Anregungspolarisationsabhängige Zählrate aus dem in *b)* gezeigten Emittor. In Übereinstimmung mit der Literatur zeigen alle in dieser Arbeit gemessenen Emittoren ein dipolartiges Verhalten. Der Kontrast in der Zählrate beträgt etwa 74%. *d, e)* Normierte Spektren zweier weiterer Emittoren in hBN unter unterschiedlichen Winkeln in der Anregungspolarisation. Im Unterschied zu den in Abbildung 4.18 gezeigten Fällen werden hier abhängig vom Anregungswinkel weitere polarisierte Spektrallinien sichtbar. Im linken Spektrum erscheint eine zusätzliche schmale Linie bei etwa 643 nm, während im rechten Spektrum ein relativ breiter Übergang um 740 nm sichtbar wird. Diese stellen vermutlich schwächere Emittoren dar, erzeugt durch weitere Defekte in der Nähe des jeweiligen dominanten Emittors dar.

sich durch die Polarisation des Anregungslasers selektiv adressieren lassen. Eine solche Abhängigkeit kann einen weiteren Hinweis liefern, dass der untersuchte Defekt in hBN aus zwei unabhängigen Emittoren besteht, die unterschiedlich orientierte Dipole besitzen. Dazu sei allerdings vorab gesagt, dass es im Rahmen der Arbeit trotz zahlreicher Versuche nicht möglich war, für einen bestimmten Defekt eine vollständige Messreihe in Emission und Anregung durchzuführen.

Alle untersuchten Emittoren, die den in den obigen Abschnitten gezeigten typischen Fingerabdruck zeigten und im Rahmen dieser Messreihen untersucht wurden, sind stets in Zeitrahmen von weniger als einer Stunde ausgeblieben (Siehe Abschnitt 4.2.6). Abbildung 4.18a,b) zeigen beispielhaft anregungspolarisationsabhängige Spektren zweier Emittoren. Die Spektren sind jeweils auf Linie 1 normiert. Die Anregungspolarisation wird mittels eines polarisierenden Strahlteilers und einer $\lambda/2$ Platte variiert. Alle Spektren

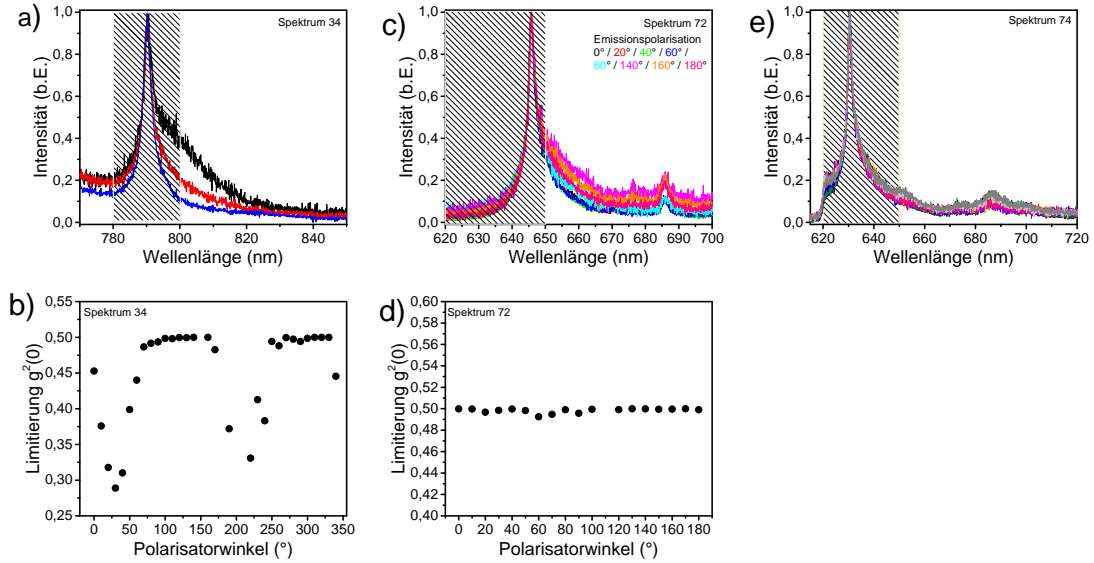


Abbildung 4.19: *a, c, e*) Emissionspolarisationsabhängige Spektren an drei verschiedenen Emittern in Multilagen hBN. Ein Linearpolarisator wird vor der Detektionsfaser platziert und Spektren bei unterschiedlichen Polarisatorwinkeln aufgenommen. Alle Spektren sind normiert auf die Stelle höchster Intensität. Es sind drei Fälle erkennbar: Die Form der Spektrallinie ändert sich stark *a*), wenig *c*), nicht *e*). *b*) Limitierung des erwarteten $g^{(2)}(0)$ Wertes berechnet durch das Verhältnis der Flächen in den Spektren von Spektrum 34 unter verschiedenen Polarisatorwinkeln im schraffierten Bereich. *d*) Selbe Auswertung wie in *b*) für Spektrum 72.

sind jeweils auf die Stelle höchster Intensität normiert. Wären die Anregungsdipole unterschiedlich orientiert, sollte man abhängig vom Anregungswinkel unterschiedlich starke Anregung beider Übergänge und damit unterschiedliche Flächenverhältnisse unter den Graphen beobachten können. Dies konnte in den in dieser Arbeit untersuchten Emittern jedoch nicht beobachtet werden. Man beachte, dass in Abbildung 4.18a,b) der Übersichtlichkeit halber lediglich jeweils Messungen bei 5 verschiedenen Anregungswinkeln gezeigt sind. Tatsächlich wurde der Winkel jeweils in 10 Grad Schritten von 0° bis 180° variiert. Abbildung 4.18c) zeigt dennoch, dass sich die Photonenemissionsrate aus dem in 4.18b) gezeigten Emitter abhängig vom Winkel der Anregungspolarisation mit einer Sichtbarkeit von 74% ändert. Das Ergebnis in 4.18c) liegt in Übereinstimmung mit den bisher berichteten Ergebnissen in [64, 69, 72]. Im Unterschied zu oben diskutierten Fällen, in denen abhängig vom Winkel der Anregungspolarisation keine Veränderungen im Spektrum der Defekte beobachtbar sind, zeigen die Abbildungen 4.18d,e) zwei Fälle, in denen mit unterschiedlichem Anregungswinkel weitere Spektrallinien sichtbar werden. Zur Diskussion steht, ob es sich bei den zusätzlich erscheinenden Linien um weitere elektronische Zustände desselben Defektes handelt oder ob sich zwei unabhängige De-

fekte im Laserfokus befinden, wovon einer spektral dominiert. Beachte, dass sich auch für diese Emittter die Zählrate mit variierender Anregungspolarisation ändert, wie man es für einen linearen Dipol erwarten würde, jedoch nicht mit optimaler Sichtbarkeit. Auf die gleiche Weise untersuchen wir die Polarisation der Emission weiterer Defekte. Abbildung 4.19a,c,e) zeigt dazu Messungen an drei verschiedenen Emitttern. Zur Untersuchung der Polarisation der Emission wird ein Linearpolarisator verwendet, der vor die Detektionsfaser im Emissionsstrahlengang platziert wird. Für verschiedene Polarisatorwinkel werden im Anschluss Spektren aufgenommen. Insbesondere für Spektrum 34 in Abbildung 4.19a) wird nach Normierung des Spektrums auf die Stelle größter Intensität deutlich, dass sich die Form der Linie drastisch ändert. Ein weiterer deutlicher Hinweis darauf, dass zwei verschiedene elektronische Übergänge diesem Defekt zu Grunde liegen und eine Bestätigung der Ergebnisse in Abschnitt 4.2.3. Die Intensität eines Phononenseitenbandes würde zusammen mit der Intensität der Null-Phononen Linie in Emission abnehmen, die Form der Linie jedoch nicht ändern. In Abbildung 4.19b) ist für alle verwendeten Polarisatoreinstellungen über das Flächenverhältnis beider Kurven der minimal zu erwartende $g^{(2)}(0)$ -Wert berechnet. Deutlich ist die Abhängigkeit des Flächenverhältnisses vom Polarisatorwinkel zu erkennen. Die hieraus errechneten $g^{(2)}(0)$ Werte zwischen 0,3 und 0,5 stimmen mit typischen, in dieser Arbeit und auch in der Literatur gemessenen Werten überein. Insbesondere zeigt dieses Beispiel, dass die Klassifizierung der Emittter in zwei Kategorien, wie sie in Tran et al in [66] vornehmen, nicht vollständig ist. Hier werden symmetrische und asymmetrische Linien gegenüber gestellt. Abbildung 4.19a) zeigt, dass diese Asymmetrie eine Folge der Polarisation der Emissionsdipole sein kann. An diesem Emittter konnte keine weitere Untersuchung erfolgen, da dieser bereits nach kurzer Zeit ausgeblissen ist. In gleicher Weise zeigt auch Abbildung 4.19d) die Auswertung der polarisationsabhängigen Spektren in Abbildung 4.19c). Obwohl sich auch hier die spektrale Form leicht ändert, ändert sich der zu erwartende minimale Einbruch um $\tau=0$ fast nicht. Dies liegt hauptsächlich an dem verwendeten Filterfenster von 620-650 nm. Erst bei Wellenlängen größer als 650 nm macht sich die Änderung der spektralen Form in den Anpassungen der Spektren bemerkbar. Daher bleibt auch mit variierendem Polarisatorwinkel der minimale Einbruch um $\tau=0$ von 0,5 über alle Winkel konstant. In der Tat konnte dieser Wert auch bestätigt werden (Messung nicht gezeigt). Dagegen zeigt Abbildung 4.19e) den Fall eines Emittters, für den sich die spektrale Form in Abhängigkeit vom Polarisatorwinkel nicht ändert. Hier liegen beide Emissionsdipole vermutlich in gleicher Richtung. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Emission der für die Asymmetrie verantwortlichen, rotverschobenen Spektrallinie eine Polarisationsabhängigkeit aufzeigt, während die Anregungsdipole scheinbar in gleicher Richtung liegen. Über die genaue Beschaffenheit der Dipole kann mit Hilfe der vorgestellten Messungen jedoch keine abschließende Aussage getroffen werden. Durch das Auftropfen der Multi-Lagen Flocken auf die Probenoberfläche sind diese vollständig zufällig orientiert. Außerdem ist bislang noch kein abschließender Vorschlag über die Art des Defektes bekannt und damit kann noch keine Vermutung über die Lage des Dipols im Ausgangsmaterial getroffen werden. In der Tat könnte auch ein Defekt in Frage kommen, der sich über mehrere Ebenen im 2D Material erstreckt. Aufgrund

der schwachen Van der Waals Bindung zwischen den einzelnen Ebenen würde dies die beobachtete hohe Instabilität und die Ausbleichrate erklären. Abschließend lässt sich jedoch festhalten, dass die Polarisationsabhängigkeit der Emissionsspektren die in dieser Arbeit aufgestellte Hypothese, dass zwei elektrische Dipole an der Emission beteiligt sind, untermauert.

4.2.8 Tieftemperaturspektroskopie

Wir spektroskopieren Multilagen hBN bei flüssig-Helium Temperaturen in einem Fluss-Kryostaten. Dazu untersuchen wir temperaturabhängig sowohl die Linienposition als auch die Linienbreite eines Emitters in einer Flocke hBN. Wir werden an dieser Stelle lediglich die Beobachtungen zusammenfassen und im Rahmen der bisher erzielten Ergebnisse in der Literatur diskutieren. Auf eine detaillierte Diskussion der Ursachen der Linienverbreiterungsmechanismen und der temperaturabhängigen Linienpositionen sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen.

Abbildung 4.20a) zeigt ein typisches Spektrum eines Emitters in hBN bei Raumtemperatur mit der üblichen dominanten asymmetrischen Linie, die durch zwei Lorentzkurven (rote Kurven) mit Zentralwellenlängen $\lambda_1 = 771,0 \text{ nm}$ und $\lambda_2 = 773,3 \text{ nm}$ angepasst wird. Zum Vergleich hierzu ist in Abbildung 4.20b) das Spektrum des gleichen Emitters wie in a) zusätzlich bei $T = 5,1 \text{ K}$ gezeigt. In der Tat sind nun deutlich zwei gaußförmige Linien sichtbar. Diese liegen bei $\lambda_1^k = 769,1 \text{ nm}$ und $\lambda_2^k = 766,6 \text{ nm}$ mit Linienbreiten von $\Delta\lambda_1^k = 0,44 \text{ nm}$ bzw. $\Delta\lambda_2^k = 0,40 \text{ nm}$. Man beachte, dass diese Linienbreiten insbesondere nicht durch die Auflösung des Spektrometers limitiert sind. Die Gaußform ist ein Hinweis auf inhomogene Verbreiterungsmechanismen wie spektrale Diffusion, wie sie für diese Emitter bereits in der Literatur berichtet wurde [132]. Wie in Abbildung 4.20e) gezeigt, limitiert diese inhomogene Verbreiterung die Linienbreite bereits unterhalb einer Temperatur von etwa $T = 100 \text{ K}$. Im Kontext der bisherigen Ergebnisse der Arbeit ist vor allem das Verhältnis der Flächen und damit der Oszillatorstärken der beiden Linien interessant. Für die beiden gaußförmigen Linien entspricht dieses hier $p = 0,25$, das auch ganz typischen Werten in den Raumtemperaturexperimenten in Abschnitt 4.2.3 entspricht.

In Abbildung 4.20c,d) sind die temperaturabhängigen Zentralwellenlängen beider beobachtbaren Linien dargestellt. Die rote Kurve ist eine Anpassung gemäß

$$\lambda(T) = a \cdot (T - 5,1 \text{ K})^3 + \lambda_{\text{off}}. \quad (4.8)$$

Die Vorfaktoren in den Anpassungen für beide Linien ergeben sich aus der Anpassung zu: $a_1 = 8 \cdot 10^{-8} (4 \cdot 10^{-9}) \text{ nm/K}^3$ bzw. $a_2 = 2,7 \cdot 10^{-7} (1 \cdot 10^{-8}) \text{ nm/K}^3$. λ_{off} bezeichnet mit $769,2 \text{ nm}$ bzw. $766,6 \text{ nm}$ die Zentralwellenlängen der Linien bei der tiefsten gemessenen Temperatur von $T = 5,1 \text{ K}$. Beachte insbesondere, dass der Exponent in der Anpassungsfunktion als feste Größe behandelt wird. Die geringen Fehler in den Vorfaktoren der Anpassungsfunktionen lassen darauf schließen, dass die Daten sehr gut durch dieses T^3 angepasst werden. Eine solche Abhängigkeit ist typisch für elektronische Übergänge in festkörperbasierten Systemen und konnte in dieser Form auch

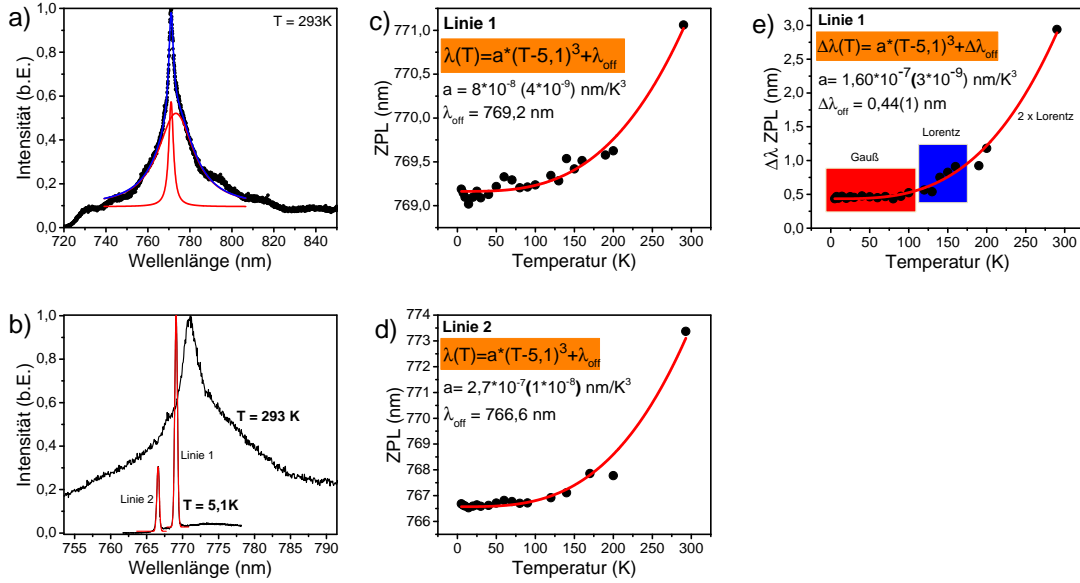


Abbildung 4.20: a) Typischer Emittor in Multilagen hBN bei Raumtemperatur mit asymmetrischer dominanter Linie angepasst durch zwei Lorentzkurven mit Zentralwellenlängen $\lambda_1 = 771,0\text{ nm}$ und $\lambda_2 = 773,3\text{ nm}$. b) Vergleich des Raumtemperaturspektrums des Emitters aus a) mit einem Spektrum bei $T = 5,1\text{ K}$ des gleichen Emitters. In der Tat werden zwei getrennte Linien sichtbar, die aufgrund inhomogener Linienverbreiterungsmechanismen (hier vermutlich spektrale Diffusion) Gaußform aufweisen. c, d) Temperaturabhängige Zentralpositionen der Linien 1 und 2 aus b). Beide Linien folgen einem T^3 Gesetz, welches typisch für festkörperbasierte Emittor ist. e) Temperaturabhängige Linienform von Linie 1. Unterhalb $T = 100\text{ K}$ dominieren inhomogene Verbreiterungsmechanismen und man misst eine gaußförmige Linie. Erst für Temperaturen $> 100\text{ K}$ dominiert die homogene Phononenverbreiterung und die Linie erhält eine Lorentzform.

bereits für Farbzentren in Diamant nachgewiesen werden. Dass beide Linien einer T^3 -Abhängigkeit gehorchen lässt den Schluss zu, dass es sich bei diesen beiden Linien tatsächlich um zwei unabhängige, elektronische Übergänge im gleichen Defekt handelt. Dies stellt einen weiteren Hinweis im Bezug zur in den vorherigen Abschnitten aufgestellten These dar, bei den untersuchten Defekten handele es sich stets um Systeme, an denen zwei unabhängige elektronische Übergänge beteiligt sind. Es sei erwähnt, dass im Temperaturbereich zwischen 200 K und 300 K keine weiteren Messpunkte aufgenommen werden konnte, da auch dieser Emittor während der Messreihe ausgeblieben ist und auch nach einigen Stunden nicht wieder aktiviert werden konnte.

Darüber hinaus ist zu betonen, dass die hier beschriebene Beobachtung den bislang in der Literatur veröffentlichten Resultaten widerspricht. In zahlreichen Veröffentlichungen wurde bereits Emission aus Punktdefekten in hBN bei kryogenen Temperaturen berich-

tet, jedoch wurde bislang keine Aufspaltung in zwei deutlich getrennte Linien berichtet [64,66,70,132,191]. Jedoch berichten die Autoren in [66], dass in einigen Fällen auch bei tiefen Temperaturen die Asymmetrie der Raumtemperaturlinien erhalten bleibt. Im Kontext der obigen Beobachtungen kann das bedeuten, dass die beiden Linien nicht stark genug gegeneinander verschieben, um sie klar voneinander trennen zu können.

4.2.9 Aktivierung von Emittern in Multilagen hBN

Teile dieses Abschnittes sind in Zusammenarbeit mit Alexander Scherrmann entstanden und wurden zum Teil bereits in [192] vorgestellt.

Verschiedene Techniken zur Aktivierung von Emittern in Monolagen, Multilagen und Bulk-hBN sind in den letzten Monaten demonstriert worden. Diese umfassen:

- a) Elektronenbestrahlung für eine Stunde in einem Rasterelektronenmikroskop (15 kV, 1,5 nA) in einer niedrig-Vakuum Wasserdampfatmosphäre [65].
- b) Ausheilen der Proben im Vakuum bei Temperaturen bis zu 1000°C. Für steigende Temperaturen wurden steigende Aktivierungseffizienzen beobachtet. Ein Hinweis darauf, dass Diffusion von Defekten und Gitter Relaxationen an der Defektbildung beteiligt sind [65, 193, 194].
- c) Bestrahlung mit He⁺-Ionen (Fläche 10x10 μm², Dosis: 5· 10¹⁵ Ionen/cm) und anschließendes Ausheilen bei 1000° in Argon Atmosphäre [176].
- d) Aktivierung von Emittern durch Ätzen der Proben mit Peroxymonosulfuric Säure (H₂O₂:H₂SO₄) [71].
- e) Ätzen der Proben mit Peroxymonosulfuric Säure und anschließender Behandlung in Phosphorsäure und Schwefelsäure, sowie Bestrahlung mit Helium und Stickstoff Ionen und Ausheilen bei 850° [71].
- f) Ätzen in Argon-Plasma und anschließendes Ausheilen der Probe [195].
- g) Bestrahlung mit hochenergetischen Elektronen (≈ MeV), ohne die Notwendigkeit des abschließenden Ausheilens bei hohen Temperaturen [196].

Insbesondere lautet der Konsens aller dieser Arbeiten, dass ein abschließender Ausheil-Prozess die Photostabilität der Emittter stark verbessert. Obwohl alle diese Techniken gezeigt haben, dass eine Aktivierung von Emittern möglich ist, soll an dieser Stelle die Effizienz einer tatsächlich gezielten Aktivierung in ausgewählten Multilagen Flocken unabhängig von den vorangehenden Studien quantifiziert werden.

Hierzu wird eine Probe gemäß der Beschreibung in Abschnitt 4.1.1 präpariert und insgesamt 100 lokalisierte fluoreszierende Punkte in einem etwa 150x150 μm² großen

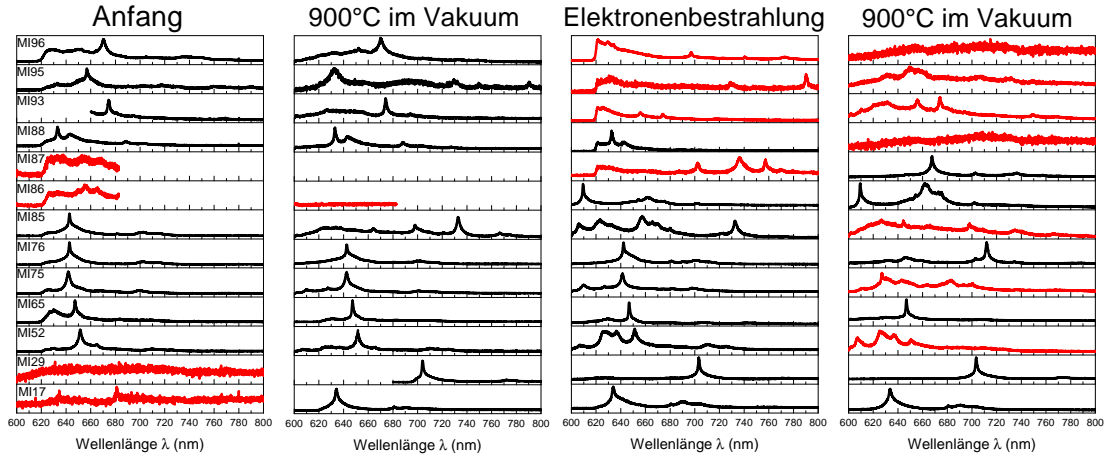


Abbildung 4.21: Überblick über die Spektren aller relevanten Emitter bei der Quantifizierung der Erzeugungseffizienz von einzelnen Quantenemittern in Multi-Lagen Flocken hBN nach verschiedenen Prozessschritten. Schwarze Graphen zeigen deutliche Spektrallinien, rote Spektren stehen für noch nicht beobachtete, bzw. ausgebliehene Emitter *a)* Unbehandeltes, kommerziell erhältliches Material (Abschnitt 4.1.1). *b)* Gleiche Flocken nach Ausheilen bei 900° im Vakuum für 1 Stunde. *c)* Gleiche Flocken nach Bestrahlung mit Elektronen im Rasterelektronenmikroskop für 1 Stunde bei einer Beschleunigungsspannung von 15 keV. *d)* Gleiche Flocken nach erneutem Ausheilen bei 900° im Vakuum für 1 Stunde (Für detaillierte Beschreibung siehe Text).

Bereich in dem in Abschnitt 3.1 vorgestellten konfokalen Mikroskop bei Raumtemperatur adressiert. Der ausgewählte Bereich ist in Abbildung 4.3 gezeigt. Ohne weitere Behandlung der Probe enthalten acht der adressierten Flocken bereits gewünschte Emitter mit den in Abschnitt 4.2.2 ausführlich diskutierten spektralen Eigenschaften. Die entsprechenden Spektren sind in Abbildung 4.21a) (Emitter MI52, MI65, MI75, MI76, MI85, MI88, MI93, MI95, MI96) gezeigt. Beachte, dass ein Teil der hier präsentierten Daten bereits in [192] vorgestellt wurde. Die Probe wird im Anschluss mehreren Prozessschritten unterzogen, wobei nach jedem Schritt alle voruntersuchten Flocken erneut adressiert werden. Beachte, dass in allen Messschritten stets die Anregungspolarisation auf die dominante, schmale Linie im Spektrum optimiert wurde, sofern eine beobachtet werden konnte.

Ausheilen bei 900° im Vakuum

Zunächst wird die Probe gemäß des Vorgehens in [65] für 1 Stunde bei 900°C im Vakuum ausgeheilt. Wie schon zuvor berichtet, sind die bereits bestehenden Defekte (Emitter MI52, MI65, MI75, MI76, MI96) stabil gegenüber diesen hohen Temperaturen (vgl. Abb. 4.21b). MI95 dagegen ist während der Temperaturbehandlung jedoch ausge-

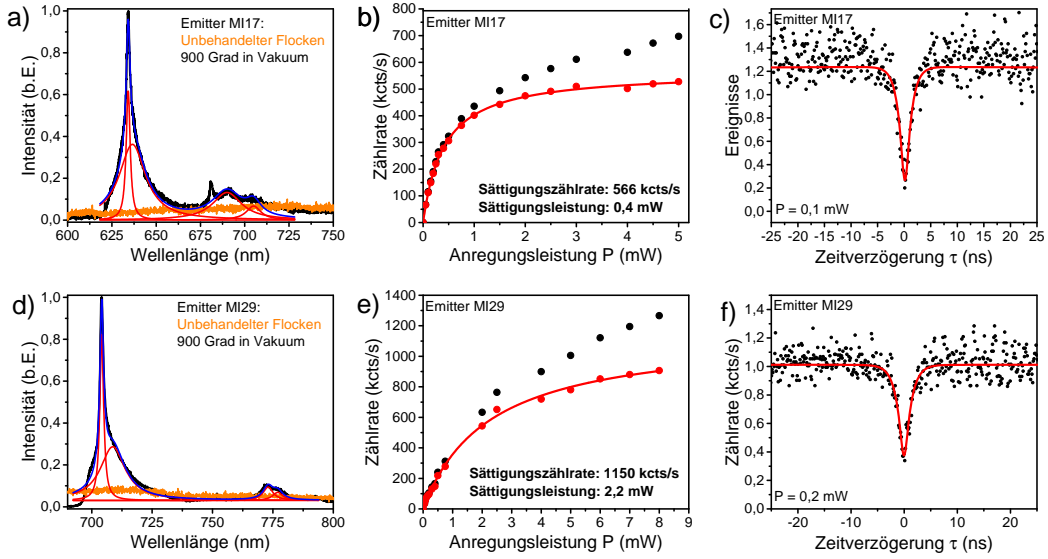


Abbildung 4.22: *a,d*) Spektren zweier nach dem ersten Ausheilschritt entstandenen einzelner Quantenemitter in hBN. *b,e*) Sättigungsmessungen an den beiden Emittern aus a) und d). Zählraten und Sättigungsleistungen liegen mit 553 kcts/s (1100 kcts/s) und 0,4 mW (1,4 mW) in dem für diese Art von Emittern typischen Bereichen. *c,f*): $g^{(2)}$ Korrelationsfunktionen für die Emitter aus a) und d).

blichen. Tatsächlich haben sich durch den Ausheilprozess vermutlich durch Diffusion von Fehlstellen zwei weitere Defekte gebildet (MI17, MI29). Nach Zobelli et al, handelt es sich bei der Fehlstellenwanderung vermutlich um Bor-Fehlstellen, die ab 840 K durch den Kristall wandern. Stickstoff-Fehlstellen bewegen sich erst ab Temperaturen kurz unter dem Schmelzpunkt des hBNs durch den Kristall und Doppelfehlstellen aus Bor und Stickstoff erst ab Temperaturen um 1400 K [197]. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, dass Bor-Atome zur Bildung der entsprechenden Defekte beitragen. Abbildungen 4.22a,d) zeigen jeweils einen Vergleich der Messungen an beiden Flocken vor und nach dem Ausheilprozess. Während zuvor keine bzw. lediglich Untergrundfluoreszenz sichtbar war, haben sich nach dem Ausheilen sehr deutlich die gewünschten spektralen Fingerabdrücke der Quantenemitter in hBN herausgebildet. Tabelle 4.3 stellt die Zentralpositionen λ_i und Linienbreiten $\Delta\lambda_i$ der zur Anpassung verwendeten Lorentzkurven, sowie die energetischen Abstände ΔE_i der Linien zusammen. Neben den Werten in Tabelle 4.3 entsprechen auch Sättigungszählraten von 553 kcts/s (1100 kcts/s) und Sättigungsleistungen von 0,4 mW (1,4 mW) beider Emitter typischen Werten, die auch im unbehandelten Ausgangsmaterial gefunden werden können.

In beiden Sättigungskurven ist deutlicher linearer Untergrund aus dem Wirtsmaterial erkennbar. Dies ist insofern bemerkenswert, als dass nach dem Ausheilschritt in der Mehrzahl der Flocken ein deutlich höherer, mit der Zeit ausbleichender Unter-

	λ_1 [nm]	λ_2 [nm]	$\Delta\lambda_1$ [nm]	$\Delta\lambda_2$ [nm]	ΔE_1 [meV]	ΔE_2 [meV]	ΔE_3 [meV]
MI17	634,2	636,8	2,7	17,0	8,0	159,5	174,1
MI29	704,1	708,7	1,6	21,0	11,4	157,8	165,3

Tabelle 4.3: Zentralpositionen λ_i , Linienbreiten $\Delta\lambda_i$ und Energetische Abstände ΔE_i zwischen elektronischen Übergängen und Seitenbänder der Emitter in Abbildung 4.22. Die Parameter wurden entnommen aus den lorentzförmigen Anpassungen an die jeweiligen Spektren. Einheiten sind nm und meV.

grund im Wirtsmaterial beobachtet werden konnte. Im unbehandelten Material konnte in Sättigungsmessungen deutlich weniger Untergrundzählrate beobachtet werden. Wie auch im unbehandelten Material erscheinen die Spektrallinien an zufälligen Positionen im Spektrum bei 634,2 nm (704,1 nm), jedoch entsprechen Linienform, Linienbreiten und insbesondere der Abstand zwischen Linie 1 und dem ersten Phononenseitenband mit 159,5 meV bzw. 157,8 meV innerhalb der Fehlergrenzen charakteristischen Werten (vgl. Abschnitt 4.2.2). Das zufällige Erscheinen neuer Spektrallinien ergänzt Beobachtungen in der Literatur, in denen sich nach dem Ausheizen Emitter bei etwa 576 nm und 689 nm bilden [65]. Geht man davon aus, dass Verspannungen im Material die Ursache der unterschiedlichen Zentralwellenlängen sind, wandern Fehlstellen bei hohen Temperaturen offenbar verspannungsunabhängig durchs Material.

Abbildung 4.23 trifft Aussagen über die Photostabilität beider Emitter. Emitter MI17 zeigt auf Zeitskalen mehrerer Sekunden für geringe Anregungsleistungen von $P=0,2$ mW und $P=0,5$ mW vollständig stabile Zählrate (Abb.4.23a), wohingegen für Anregungsleistungen ab $P=1$ mW für jeweils kurze Zeit ein weiterer beteiligter Zustand in der Dynamik sichtbar wird (Abb.4.23b). Der Kontrast in den Zählraten beider Zustände beträgt jedoch nur etwa 5 %. Ähnliche Aussagen lassen sich über Emitter MI29 treffen. Für geringe Anregungsleistungen $P=0,2$ mW (Abb.4.23c) beobachtet man stabile Photonemission. Lediglich in einem kurzen Zeitintervall wird ein weiterer beteiligter Zustand sichtbar. Die langsam abfallende Zählrate über einen Zeitraum von mehreren Minuten lässt sich einer Drift des beobachteten Emitters aus dem Anregungsfokus zuschreiben. Für höhere Anregungsleistungen (Abb.4.23d) können die gleichen Aussagen getroffen werden wie zuvor.

Neben den nun im Detail erläuterten, durch den Ausheiz-Prozess entstandenen Emittern sind weitere Auffälligkeiten im Vergleich zur Ausgangssituation beobachtbar. Während sich durch den Ausheilprozess der Untergrundanteil des Wirtsmaterials im Spektrum von Emitter MI65 verringert, emittiert Emitter MI85 nun in eine Null-Phononen-Linie bei etwa 730 nm. Man beachte, dass zu Emitter MI87 nach diesem ersten Ausheizschritt keine Daten vorliegen. Der verringerte Untergrund in Emitter MI65 lässt sich erklären durch Diffusion von Defekten entweder weg von dem eigentlich interessanten Defekt

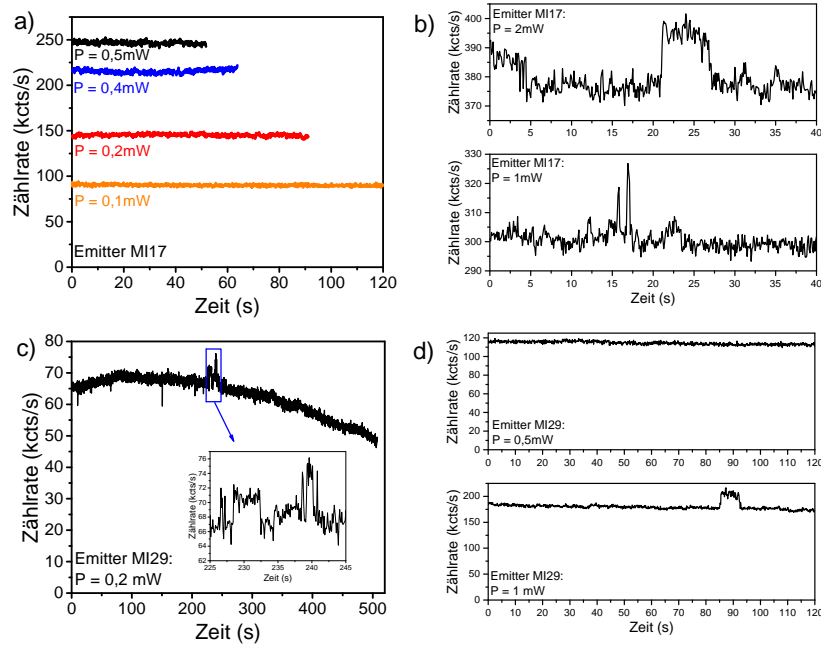


Abbildung 4.23: Emissionsraten der durch das Ausheilen der Probe entstandenen Emittoren MI17 (a,b) und MI29 (c,d). Emittor MI17 ist für Anregungsleistungen kleiner 1mW auf Zeitskalen von Minuten stabil. Bei Anregungsleistungen ab 1 mW wird ein zusätzlicher Zustand sichtbar. Der Kontrast in den Zählraten zwischen den beiden Zuständen beträgt etwa 5 %. Emittor MI29 ist auf Minutenskala stabil. Der kontinuierliche Rückgang der Zählrate in c) ist auf eine leichte Drift des Emittors aus dem Anregungsfokus zurückzuführen. Auch bei höheren Leistungen bleibt die Zählrate konstant. Lediglich kurz wird jeweils ein weiterer Zustand sichtbar. Siehe Vergrößerung in c) und Teil d). Der Zählratenkontrast beträgt jeweils etwa 10 %.

oder gar durch Diffusion aus dem Wirtsmaterial heraus, falls sich diese zusätzlichen Defekte bereits in Oberflächennähe befunden haben. Im Fall von Emittor MI85 ist der zu Beginn vorhandene Defekt vermutlich ausgeblieben und es hat sich ein weiterer Defekt in dem gleichen Flocken gebildet.

Ziel war es, durch den Ausheilschritt stabile Defekte in den untersuchten Flocken zu erzeugen. Dies ist insbesondere in den oben beschriebenen beiden Fällen (Emittor MI17+MI29) gelungen. Als letzte Beobachtung während der Untersuchung aller Emittoren soll zum Ende erwähnt werden, dass eine deutlich größere Anzahl an Flocken nach dem Ausheilen eine über die Zeit ausbleichende Zählrate zeigt. Neben den hier beschriebenen stabilen Defekten werden offensichtlich viele Defekte generiert, die unter optischer Anregung auf Zeitskalen weniger Sekunden instabil werden, für das angestrebte Ziel stabiler Emission der gewünschten spektralen Form daher nicht verwertbar sind. In einem weiteren Schritt wird im Folgenden beschrieben, inwieweit die Bestrahlung der

Flocken mit Elektronen in einem Rasterelektronenmikroskop die Bildung neuer stabiler, Quantenemitter begünstigt.

Elektronenbestrahlung

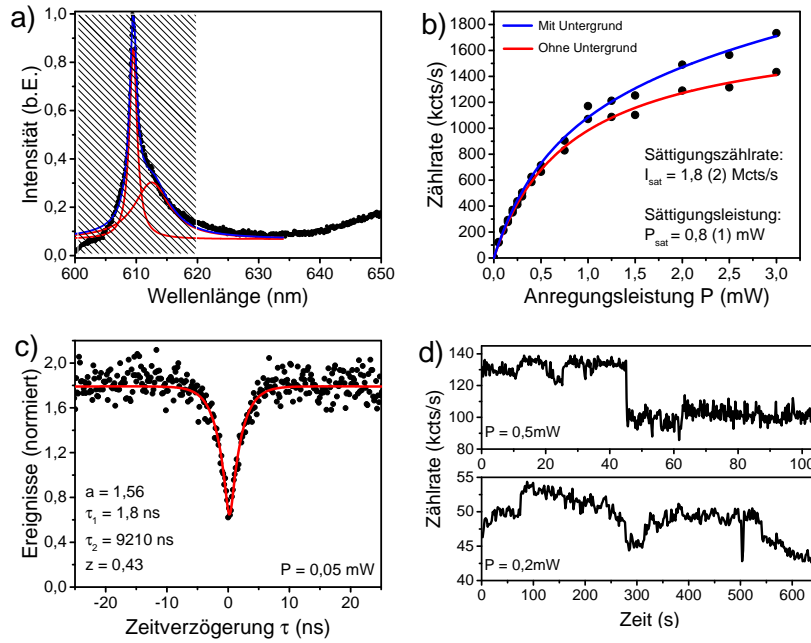


Abbildung 4.24: Nach der Elektronenbestrahlung entstandener Emitter MI86. a) Spektrum mit schmaler Spektrallinie bei $\lambda_1 = 610$ nm. b) Sättigungsmessung mit typischer hoher Sättigungszählrate $I_{\text{sat}} = 1,8$ Mcts/s und Sättigungsleistung $P_{\text{sat}} = 0,8$ mW. c) Messung der $g^{(2)}$ -Funktion mit typischen Zeitkonstanten und $g^{(2)}(0) = 0,65$. d) Zählrate gegen Zeit für zwei verschiedene Anregungsleistungen. Der maximale Zählratenkontrast zwischen den Zuständen maximaler und minimaler Emission beträgt etwa 20 %

Die Probe wird nun in dem Bereich, in dem sich die zu untersuchenden Emitter befinden, im Rasterelektronenmikroskop für 1 Stunde unter einer Beschleunigungsspannung der Elektronen von 15 keV (1,4 nA) bestrahlt (vgl. [65]). Der Vergleich in Abbildung 4.21 zeigt zunächst, dass die schmalen Spektrallinien der Emitter MI93 und MI96 nicht mehr aufzufinden sind, stattdessen lediglich breitbandiger Untergrund das Spektrum dominiert. Ebenso sind bei den Emittoren MI52 und MI85 die Untergrundanteile im Spektrum im Vergleich zu den schmalen Null-Phononen Linien angewachsen. Es ist zu erwähnen, dass dies nicht durch eine veränderte Anregungspolarisation verursacht wird. Diese wurde in den hier verglichenen Fällen stets so gewählt, dass die dominanten Spektrallinien den optimalen Kontrast zum Untergrund zeigen. Der nach

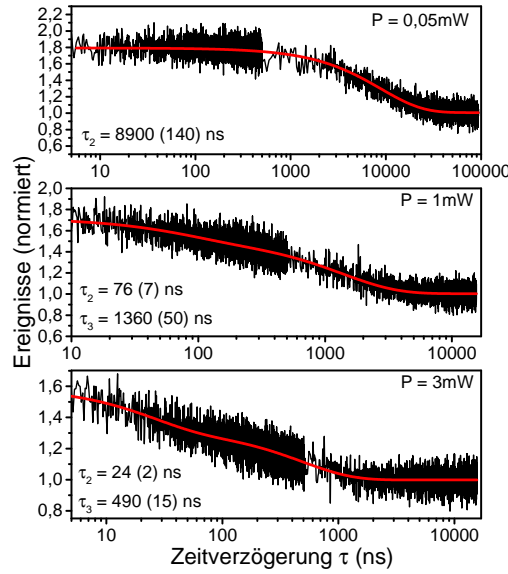


Abbildung 4.25: Langzeitkorrelationsmessungen an Emitter MI86. Für steigende Anregungsleistung beobachtet man analog zu Abschnitt 4.2.5 eine schnellere Entvölkerung des metastabilen Zustandes. Außerdem wird für steigende Anregungsleistung der Einfluss eines weiteren metastabilen Zustandes deutlich.

dem Ausheizen ausgeblichene Emitter 95 konnte durch die Elektronenbestrahlung nicht reaktiviert werden. Jedoch konnte durch die Bestrahlung in Flocke 86 ein zuvor nicht beobachtbarer Emitter mit Zentralposition der Null-Phononen-Linie bei $\lambda = 610$ nm gefunden werden. In Abbildung 4.24 sind Spektrum (a), Sättigungsmessung (b) und Messung der Korrelationsordnung zweiter Ordnung (c) an diesem Emitter gezeigt. Alle diese Messungen reihen sich nahtlos in alle vorherigen Beobachtungen ein. Die Position der Null-Phononen-Linie ist nicht vorhersagbar und der Einbruch der $g^{(2)}$ -Funktion bei verschwindender Zeitverzögerung ist verglichen mit dem vorhandenen Untergrund, der aus der Sättigungsmessung bestimmt werden kann, deutlich zu hoch. Ebenso liegen die Werte für Sättigungszählrate und Sättigungsleistung mit $I_{\text{Sat}}=1760$ kcts/s und $P_{\text{Sat}}=0,8$ mW bei typisch beobachtbaren Werten. Abbildung 4.24 zeigt beispielhaft den zeitlichen Verlauf der Photonenemission. Auch für diesen Emitter ist eine sehr unregelmäßige Emissionsrate zu beobachten. Mehrere Emissionslevel sind beobachtbar, wobei der maximale Zählratenkontrast zwischen den Zuständen maximaler und minimaler Emission etwa 20 % beträgt. Dies ist vermutlich jedoch keine Folge der Art der Emitteraktivierung, sondern wie allgemein beobachtet, ein zufälliger Effekt, vermutlich durch Ladungszustandswechsel oder Aktivierung eines schwächeren Emitters in der Nähe des untersuchten Defektes. In Abschnitt 4.2.5 haben wir bereits gesehen, dass am Zerfall der untersuchten Emitter mindestens ein weiterer metastabiler Zustand beteiligt ist. Abbildung 4.25 zeigt drei Langzeitkorrelationsmessungen an Emitter MI86 bei Anregungs-

leistungen $P=0,05\text{ mW}$, $P=1\text{ mW}$ und $P=3\text{ mW}$. Deutlich ist für steigende Anregungsleistung die Beteiligung einer zweiten Bunchingzeitkonstanten ersichtlich, die, analog zu den in Abschnitt 4.2.5 beschriebenen Fällen etwa eine Größenordnung kleiner als die erste ist. Es ist davon auszugehen, dass dieser metastabile Zustand auch bereits bei geringen Anregungsleistungen bevölkert wird, sein Einfluss in der $g^{(2)}$ -Messung jedoch aufgrund der deutlich höheren Zeitkonstanten des ursprünglichen Zwischenzustandes vernachlässigbar klein ist. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass durch die Elektronenbestrahlung ein neuer typischer Emitter erzeugt werden konnte (MI86), jedoch hat die Bestrahlung auch zum Ausbleichen zweier zuvor vorhandener Emitter geführt (MI93, MI96) sowie in einigen Flocken den Untergrund im Vergleich zur Emission aus den gewünschten Defekten erhöht. Erwähnenswert ist, dass die beiden Emitter MI17 und MI29, die sich nach dem ersten Ausheilschritt gebildet haben, von der Elektronenbestrahlung vollständig unberührt blieben. Weder hat sich ihre Spektrallinie verschoben, noch ist zusätzlicher Untergrund im Spektrum sichtbar geworden.

Zweiter Ausheilschritt bei 900° im Vakuum

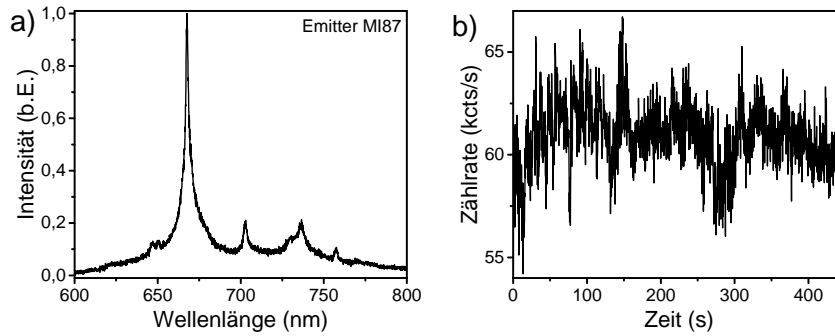


Abbildung 4.26: a) Spektrum eines nach dem zweiten Ausheilschritt neu beobachtbaren Emitters mit Zentralwellenlänge bei $\lambda=667,7\text{ nm}$ und Linienbreite $\Delta\lambda=2,5\text{ nm}$. b) Zeitlicher Verlauf der Emissionsrate für Emitter MI87. Kontinuierliches Blinken mit Zählratenkontrast bis zu 15% ist sichtbar.

Zuletzt wird die Probe analog zum ersten Schritt erneut bei 900°C im Vakuum ausgeheilt. Zufällige, durch die Elektronenbestrahlung entstandene Defekte in den Flocken können hierdurch erneut durch das Material diffundieren und neue Quantenemitter bilden. Laut vorherigen Untersuchungen soll dies insbesondere die Photostabilität der Emitter erhöhen [65]. Die hier vorgestellte quantitative Untersuchung kann diese Behauptung jedoch nur bedingt bestätigen. Während die Emitter MI17, MI29, MI65 und MI86 durch das weitere Ausheizen nicht beeinflusst werden, bleichen die Emitter MI52, MI75 und MI88 aus. Auf der anderen Seite konnte aber auch nach diesem Prozessschritt in einem der Flocken (MI87) eine neue schmale Linie gefunden werden, die in

allen vorherigen Messungen nicht zu beobachten war. Das entsprechende Spektrum ist in Abbildung 4.26a) gezeigt. Die wiederum asymmetrische Null-Phononen-Linie bei $\lambda=667,7$ nm zeigt eine Breite von $\Delta\lambda=2,5$ nm. Der energetische Abstand zwischen ZPL und dem ersten Phononen-Seitenband beträgt 159,3 meV. Damit reiht sich auch dieser Emitter in die üblich zu beobachteten Spektren ein. Abbildung 4.26b) zeigt die Zählrate aufgenommen gegen die Zeit und offenbart auch für diesen Emitter kontinuierliches Blinken auf Sekunden bis Minutenskala mit Zählratenkontrast bis zu 10 %. Während einer Sättigungsmessung ist dieser Emitter ausgeblieben. In Kombination zu dem beobachteten Blinken der nach dem ersten Ausheilschritt entstandenen Emittoren kann auch diese Messung die in der Literatur getroffene Annahme, Ausheilen bei Temperaturen um 900-1000°C steigere die Stabilität der Emission, nicht bestätigen. Jedoch muss erwähnt werden, dass zu einer statistisch relevanten Aussage mit Sicherheit noch deutlich mehr Emittoren untersucht werden sollten. In Tabelle 4.4 sind alle relevanten Emittoren dieser Versuchsreihe noch einmal aufgelistet. Haken bedeuten, dass in den jeweiligen Spektren klar ersichtliche, schmale Linien sichtbar waren. Kreuze bedeuten, dass Emittoren entweder noch nicht, oder nicht mehr beobachtbar waren. In den vorherigen Abschnitten wurde die Aktivierungseffizienz nach jedem der drei Prozessschritte diskutiert. Es wurde nachgewiesen, dass sowohl Ausheilen bei 900°C, als auch Elektronenbestrahlung der Probe zur Aktivierung typischer Quantenemitter führen kann. Eine signifikante Verbesserung der Photostabilität (Abb.4.23,Abb.4.24d) oder konkrete Vorhersagen der Position der Null-Phononen-Linie (Abbildungen 4.22,4.24,4.26) durch die entsprechenden Behandlungsschritte konnte jedoch nicht abschließend nachgewiesen werden. Eine deterministisch gezielte Aktivierung von Emittoren konnte nicht beobachtet werden.

Zusammenfassend komme ich zu dem Schluss, dass eine Behandlung des Ausgangsmaterials durch die hier beschriebenen Prozessschritte zu einer Aktivierung von Emittoren führen kann. Jedoch führt die Aktivierung nicht zu auffälliger, signifikant verbesserter Photostabilität oder Vorteilen in der spektralen Form.

Emitter	Anfang	Ausheilen	e^- -Bestrahlung	Ausheilen
MI17	X	✓	✓	✓
MI29	X	✓	✓	✓
MI52	✓	✓	✓	X
MI65	✓	✓	✓	✓
MI75	✓	✓	✓	X
MI76	✓	✓	✓	✓
MI85	✓	✓	✓	X
MI86	X	X	✓	✓
MI87	X	X	X	✓
MI88	✓	✓	✓	X
MI93	✓	✓	X	X
MI95	✓	X	X	X
MI96	✓	✓	X	X

Tabelle 4.4: Zusammenstellung aller relevanten Emitter während der Versuchsreihe, einzelne Quantenemitter in Multi-Lagen Flocken hBN durch Ausheilen sowie durch Elektronenbestrahlung zu erzeugen. Haken bedeuten, dass im Spektrum des entsprechenden Flocken eine klar ersichtliche Spektrallinie, die einem einzelnen Defekt zugewiesen werden kann, beobachtet wird. Kreuze bedeuten, dass eine deutliche Spektrallinie noch nicht oder nicht mehr beobachtet werden kann. Einige der in der Tabelle zusammengefassten Emitter wurden bereits in einer vorherigen Arbeit präsentiert [192]

4.3 Spektroskopie an Defekten in Monolagen hBN

Gemäß der Beschreibung in Abschnitt 4.1.2 befinden sich die Monolagen hBN bereits auf dielektrischen Spiegeln zur späteren Kopplung an Resonatoren. Abbildung 4.27a) zeigt einen Fluoreszenzscan um eine solche Monolagen Flocke mit einer lateralen Ausdehnung von etwa $50\text{ }\mu\text{m}$. Der Kreis markiert die Position eines Quantenemitters, dessen Spektrum in Abbildung 4.27d) gezeigt ist. Auffallend ist, dass das Spektrum mit $\Delta\lambda=11,9\text{ nm}$ deutlich breiter ist, als die Spektren der oben vorgestellten Emitter. Darauf werden wir weiter unten noch einmal eingehen. Eine Sättigungsmessung liefert eine untergrundkorrigierte Sättigungszählrate von etwa $P_{\text{sat}}=1,5\text{ Mcts/s}$ bei einer Sättigungsleistung von etwa $I_{\text{sat}}=0,9\text{ mW}$. In Abbildung 4.27e) ist außerdem eine $g^{(2)}$ -Messung an diesem Emitter gezeigt. Die rote Linie ist eine Anpassung gemäß des in Abschnitts 3.3 vorgestellten Modells. Die extrahierten Parameter sind in der Abbildung gelistet. Man beachte, dass die hier gemessene $g^{(2)}$ -Funktion aufgrund der sehr niedrigen τ_1 -Zeit von 360 ps im Prinzip vollständig durch den Jitter der APDs limitiert ist.

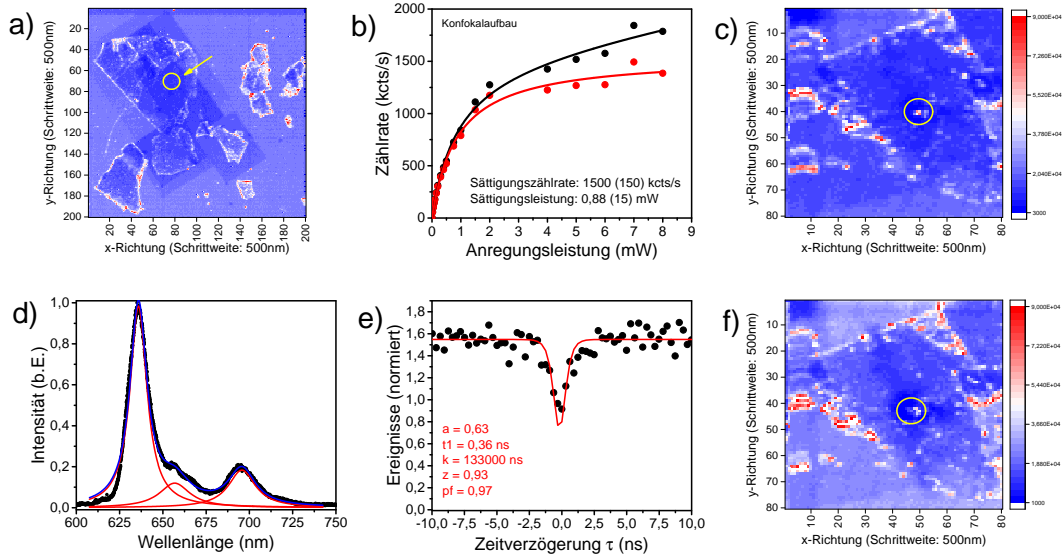


Abbildung 4.27: a) Monolagen Flocke hexagonalen BorNitrids auf einem dielektrischen Spiegel zur Kopplung an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Der Kreis markiert die Position eines Emitters auf der Flocke. b) Sättigungsmessung an dem markierten Emitter. Schwarz: Mit Untergrund, Rot: Untergrundkorrigiert. Sättigungszählrate: $I_{\text{sat}}=1,5$ Mcts/s, Sättigungsleistung: $P_{\text{sat}}=0,88$ mW c) Detailscan um die Position des Emitters. d) Spektrum des Emitters. e) $g^{(2)}$ -Messung an dem Emitter. Der Einbruch um $g^{(2)}(0)$ ist limitiert durch den Jitter der Zählelektronik. f) Detailscan um den Bereich des Emitters, nachdem er ausgebleicht ist. Der Emitter konnte nicht wieder reaktiviert werden.

Wie auch in den Messungen an den Emitttern in den Multilagen Flocken zu beobachten war, bleichen auch Emittter in Monolagen nach nicht vorhersagbaren Zeiten zwischen Sekunden und weniger Stunden nichtresonanter Anregung aus. Dies veranschaulichen Abbildungen 4.27c,f). Beide zeigen einen Detailscan um den Bereich des Emitters, wobei der Kreis wiederum die Position des Emitters markiert. Während dieser in c) deutlich Fluoreszenz zeigt, kann er in f) nicht wiedergefunden werden. In dieser Arbeit konnten lediglich zwei weitere typische hBN Quantenemitter in diesen Monolagen gefunden werden. Die spektralen Parameter aller drei Emittter sind in Tabelle 4.5 zusammengefasst. Abbildung 4.28b) und e) zeigen die gemessenen Spektren mit den typischen spektralen Fingerabdrücken. Sättigungsmessungen konnten an den Emitttern nicht durchgeführt werden, da die Emittter kurz nach den $g^{(2)}$ -Messungen (vgl. Abb. 4.28c,f) ebenfalls ausgebleicht sind.

Auffallend ist, dass die Linienbreiten $\Delta\lambda_1$ deutlich breiter sind als die entsprechenden Linien in den Multilagen Flocken. Die Ursache hierfür liegt vermutlich in der Nähe zur Oberfläche der Defekte in den Monolagen im Vergleich zu den Multilagen Flocken, in denen die Defekte stärker von der Umgebung abgeschirmt ist. Auch andere

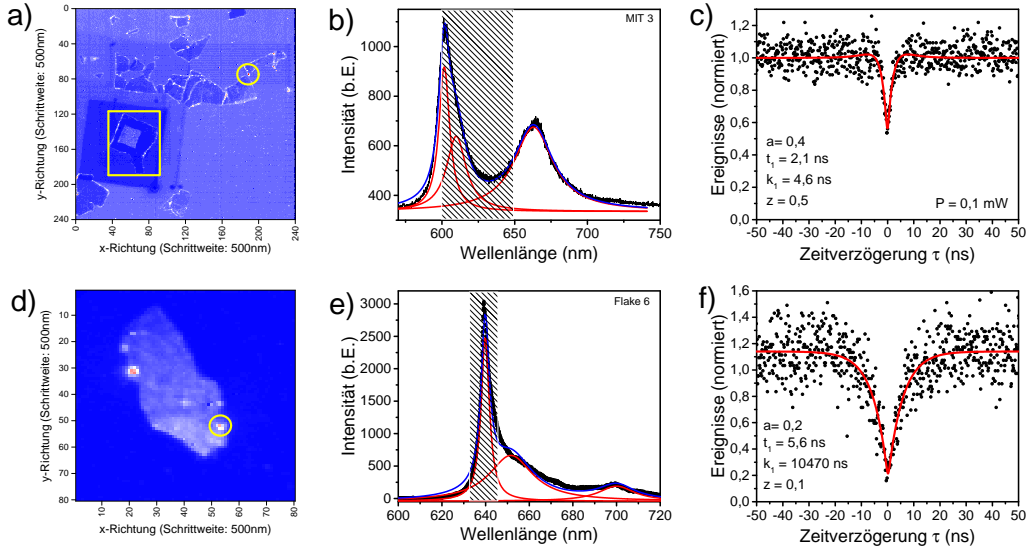


Abbildung 4.28: *a,d*) Fluoreszenzscans um zwei weitere Monolagen Flocken, an deren Kanten typische hBN Quantenemitter gefunden werden konnten. *b,e*) Spektren der jeweiligen Emittter. Die entsprechenden Parameter sind in Tabelle 4.5 zusammengefasst. Markiert sind die Wellenlängenbereiche, in denen Photonen für die $g^{(2)}$ -Messung gesammelt wurden. *c,f*) $g^{(2)}$ -Messungen an beiden Emitttern. Die roten Kurven sind Anpassungen. Das auch für die Multilagen Emittter verwendete Modell kann auf die Daten in c) angewandt werden. In f) muss p als freier Parameter angepasst werden. Aus dem Spektrum würde man $p=0,2$ erhalten. Der Fit liefert dagegen $p=0,1$.

Festkörperemitter wie NV-Zentren oder SiV-Zentren in Diamant in Oberflächennähe zeigen Effekte wie spektrale Diffusion, Photoinstabilität und Ladungszustandswechsel [198–200]. Analog zu diesen Systemen liefert dies auch eine Erklärung für die Beobachtung, dass die Emittter in den Monolagen deutlich schneller ausbleichen. In Abbildung 4.29 sind für Emittter F6 die Emissionsraten für verschiedene Anregungsleistungen gegen die Zeit aufgetragen. Wie es auch in den Multilagen Flocken beobachtet werden kann, zeigt dieser Emittter auf Zeitskalen von mehreren 10 Sekunden stabile Zählrate. Zu nicht vorher bestimmbaran Zeitpunkten werden zufällige Übergänge in hellere und dunklere Zustände sichtbar. Diese Zeitpunkte sind in Abbildung 4.29 durch rote Vierecke hervorgehoben. Diese Übergänge sind insbesondere unabhängig von der Anregungsleistung. Dieses Verhalten kann auch für die Emittter F2 und MIT3 beobachtet werden. Damit sind diese Resultate vergleichbar mit den Beobachtungen in Abschnitt 4.2.6 und die dort diskutierten Gründe lassen sich analog auch in diesem Fall anführen.

Im Einklang mit Berichten in der Literatur erscheinen diese Emittter bevorzugt entlang des Randes der Flocken (vgl. Abb. 4.28a,d) [69, 195]. Dies ist insofern zu erwarten, als dass die Emittter aus Defekten im Wirtsmaterial entstehen. Entlang des Randes

	λ_1 [nm]	λ_2 [nm]	λ_3 [nm]	$\Delta\lambda_1$ [nm]	$\Delta\lambda_2$ [nm]	$\Delta\lambda_3$ [nm]	ΔE_1 [meV]	ΔE_2 [meV]
F2	635,9	656,8	695,7	11,9	21,5	18,9	62,1	167,7
F6	639,8	651,6	700,0	4,6	24,2	20,0	35,1	166,8
MIT3	601,6	609,8	662,9	9,0	16,4	32,7	27,7	190,7

Tabelle 4.5: Zentralpositionen λ_i , Linienbreiten $\Delta\lambda_i$ und Energetische Abstände ΔE_i zwischen elektronischen Übergängen und Seitenbänder der Emittoren in den Abbildungen 4.27 und 4.28. Die Parameter wurden entnommen aus den lorentzförmigen Anpassungen an die jeweiligen Spektren. Einheiten sind nm und meV.

sind bereits natürlicherweise Defekte vorhanden, da die einzelnen Monolagen Flocken aus einer großflächigen Monolagen Schicht hBN herausgebrochen sind [73, 74, 76, 78]. Nachbehandlungen der Probe wie Ausheizen an Luft und im Vakuum für je 4 Stunden bei 350°C und Elektronenbestrahlung [69] im Rasterelektronenmikroskop konnten die Emittoren nicht wieder reaktivieren. Die Temperatur durfte aufgrund des dielektrischen Spiegels nicht höher gewählt werden, da höhere Temperaturen die Spiegelschichten angreifen und die Transmissionskurven verändern können. Allgemein wurden bislang mehrere Methoden berichtet, die zur Aktivierung von Emittoren in großflächigen hBN Flocken führen. Grosso et al bestrahlen einen etwa 100 nm dicken hBN Flocken auf einem Bereich von $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ mit He^+ Ionen mit einer Dosis von 5×10^5 Ionen pro cm^2 [176]. Nach anschließendem Ausheizen in Argon Atmosphäre bei 1000°C sehen sie im bestrahlten Bereich eine einheitlichere Schicht hBN mit geringerer Anzahl fluoreszierender Defekte. Darüberhinaus können sie an einer zufälligen Position innerhalb des bestrahlten Bereichs einen der in dieser Arbeit berichteten typischen hBN Quantenemitter finden. In Abbildung 4.28a) ist ein hBN Partikel gezeigt, der auf die gleiche Art mit He^+ Ionen bearbeitet wurde (gelbes Viereck). Der bestrahlte Bereich in der Mitte ist deutlich zu erkennen. Allerdings kann aufgrund des Substrats der anschließende Ausheilschritt bei 1000°C nicht durchgeführt werden. Spektral ist in dem bestrahlten Bereich eine erhöhte Untergrundfluoreszenz zu finden, jedoch kein Anzeichen der gewünschten hBN-Defekt Emission. Eine alternative Methode zur Emittoraktivierung berichteten Xu et al in [195]. Sie behandeln hBN-Kristalle in Ar-Plasma und heilen die Probe im Anschluss ebenso in Ar-Atmosphäre aus. Bereits nach der Plasma-Behandlung finden sie deutlich mehr fluoreszierende Defekte, die jedoch instabile Zählrate zeigen und ausbleichen. Erst nach dem Ausheilschritt bleiben die Emittoren photostabil. Allerdings finden auch sie Emittoren bevorzugt an den Rändern der hBN Kristalle. Eine gezielte Aktivierung an vorgegebenen Positionen ist auch hier nicht möglich. Eine gezielte Aktivierung von Quantenemittern in 2-dimensionalen Materialien kann durch lokale Verspannungen erreicht werden. So wurde beispielsweise berichtet, dass Wolframdiselenid und Wolframdisulfid Monolagen, die auf einem rechteckigen Raster aus Nanostäbchen (Durchmesser: 150 nm, Höhe: 60-190 nm) in einem Silizium Substrat abgelegt werden, genau

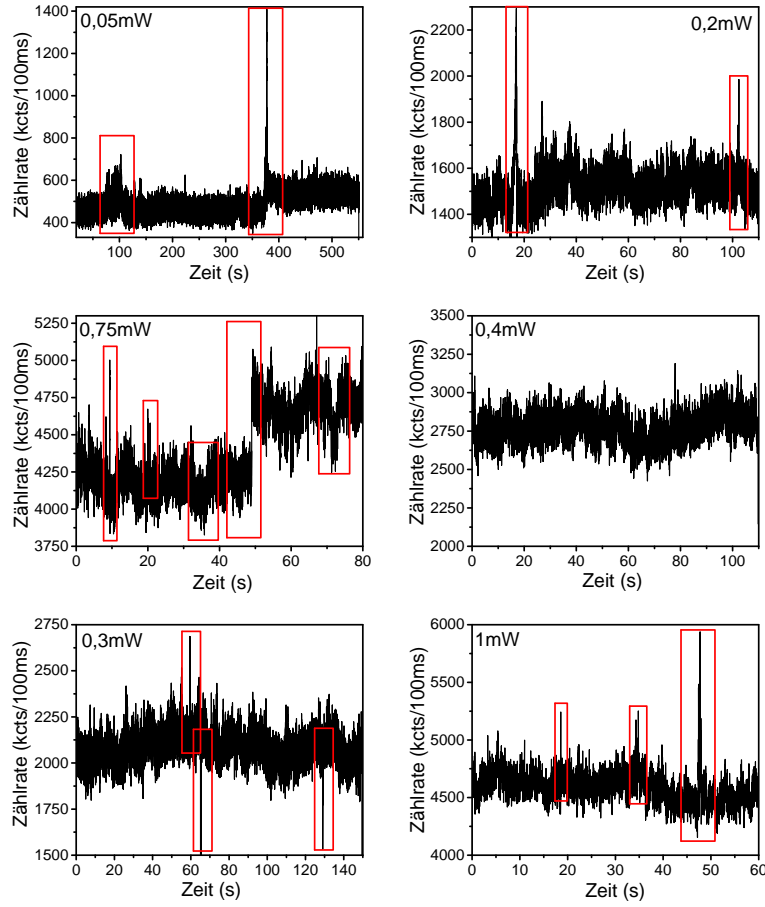


Abbildung 4.29: Emissionsrate aus Emitter F6 für verschiedene Anregungsleistung aufgetragen gegen die Zeit (Auflösung: 100 ms). Hervorgehoben sind die Zeitpunkte, in denen der Emitter in hellere bzw dunklere Zustände wechselt. Diese Übergänge stehen in keinem Zusammenhang zur Anregungsleistung und geschehen zu zufälligen Zeitpunkten. Diese Beobachtung steht repräsentativ für alle in dieser Arbeit untersuchten Emitter in Monolagen.

an diesen Stellen Emission zeigen, an denen die Stäbchen lokale Verspannungen in den Monolagen erzeugen und somit Exzitonen einschließen [201–203]. Dies konnte auch für Emitter in Monolagen hBN beobachtet werden [204]. Die Autoren schließen, dass die Emitteraktivierung aus einem Einfangen von Ladungen in deformierten Potentialen nah der Stelle ist, an dem das hBN den größten Krümmungsradius erreicht.

Im Rahmen der Arbeit werden mehrere Schritte zur gezielten Emittieraktivierung durchgeführt:

a) **Gezielte e^- -Bestrahlung im REM mit 3 kV bis 30 kV:**

Abbildung 4.30 zeigt die Positionen, die jeweils für 60 Sekunden mit den jeweils angegebenen Beschleunigungsspannungen bestrahlt wurden. Nach der Elektronenbestrahlung zeigte der dielektrische Spiegel selbst stark erhöhte Untergrundfluoreszenz, die durch Ausheizen bei 450°C für 4 Stunden an Luft wieder ausgeblüht werden konnte. Allerdings konnten auf diese Weise keine neuen Emittier aktiviert werden.

b) **Strukturierung mit fokussiertem Strahl aus Gallium Ionen:**

Emittier finden sich hauptsächlich entlang der Kanten der Flocken, wo bereits natürlicherweise Defekte im Gitter vorhanden sind. Mittels eines fokussierten Strahls aus Gallium Ionen strukturieren wir die Oberfläche einer Monolage auf dem dielektrischen Spiegel. Abbildung 4.31 zeigt jeweils Rasterelektronenmikroskopaufnahmen und Fluoreszenzscans an zwei behandelten Monolagen Flocken. Wie bereits zuvor ist stark erhöhte Untergrundfluoreszenz aus dem Spiegel zu beobachten. Diese kann nach erneutem Ausheizen bei 450°C für 4 Stunden an Luft wieder entfernt werden. Die in die Monolagen geschriebenen Strukturen können in den Fluoreszenzscans wiedergefunden werden. In Abbildung 4.31 sind lediglich Übersichtsscans über die gesamten Flocken gezeigt. Auch in Detailaufnahmen konnten keine neu entstandenen Emittier entlang der durch die Prozessierung neu entstandenen Kanten beobachtet werden (vgl. zB. Kreise in Abbildung 4.31c). Beachte, dass in Abbildung 4.31 beispielhaft lediglich zwei bearbeitete Flocken gezeigt sind. Insgesamt wurden in dieser Versuchsreihe fünf Flocken gemäß der beschriebenen Methode bearbeitet. Neue Emittier konnten auch in diesen Flocken nicht nachgewiesen werden.

c) **Behandlung in Argonplasma:**

Im letzten Schritt behandeln wir Monolagen hBN auf einem dielektrischen Spiegel in Argon Plasma für 40 Minuten bei einer Leistung von 100 W. Xu et al messen eine erhöhte Emittierdichte in hBN nach Behandlung in Argon Plasma bei 200 W für 2 Minuten [195]. Die dort berichteten Emittier erscheinen im Einklang mit allen bisherigen Untersuchungen entlang der Kanten des hBN, sind jedoch instabil und zeigen starkes Blinken. Anschließendes Ausheizen in Argon Atmosphäre bei 850°C führt bei ihnen zu einer erhöhten Photostabilität und einer stabileren Emissionsrate. Wir erreichen durch technische Limitierung lediglich eine Leistung von 100 W, ätzen jedoch mit 40 Minuten deutlich länger. Wie auch zuvor kann aufgrund des Substrats der anschließende Ausheilschritt bei solch hohen Temperaturen nicht durchgeführt werden. Jedoch kann auch keine instabile Emission unmittelbar nach der Plasmabehandlung festgestellt werden, wie in [195] berichtet.

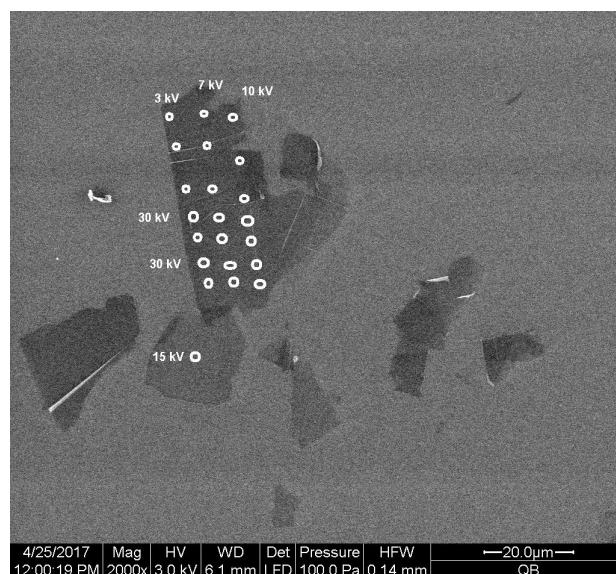


Abbildung 4.30: Rasterelektronenmikroskopaufnahme des mit Elektronen bestrahlten hBN Flocken. An den markierten Punkten wurde der Flocken für 60 Sekunden mit den jeweils angegebenen Beschleunigungsspannungen bestrahlt mit dem Ziel, lokal emittierende Defekte zu erzeugen. Nach der Elektronenbestrahlung zeigte der Spiegel stark erhöhte Untergrundfluoreszenz, die durch Ausheizen an Luft für 4 Stunden bei 350°C ausgeblichen werden konnte.

Die bereits berichteten erfolgreichen Versuche zur Emittieraktivierung können in dieser Arbeit nicht reproduziert werden. Insgesamt lässt sich festhalten, dass Emission aus den Monolagen eine geringere Photostabilität aufweist als in den Multilagen Proben. Es konnten allerdings nur drei Emittter gefunden werden, die die typischen Emissionslinien zeigen. In Übereinstimmung mit der Literatur finden auch wir Emittter bevorzugt an den Kanten der Monolagen Flocken. Die Emissionslinien weisen im direkten Vergleich mit $\Delta\lambda = 11,9 \text{ nm}$, $\Delta\lambda = 4,6 \text{ nm}$ und $\Delta\lambda = 9,0 \text{ nm}$ deutlich breitere Linienbreiten auf als solche in den Multilagen Flocken, deren Linienbreite gemittelt über 37 Emittter bei $\Delta\lambda = 2,79 \text{ nm}$ liegt. Ein Grund hierfür liegt mit Sicherheit in der Oberflächennähe der Defekte. Das Verhalten der Emissionsrate gegen die Zeit aus beiden Wirtsmaterialien ist vergleichbar. Allerdings muss betont werden, dass eine detaillierte Untersuchung des zeitlichen Verlauf der Zählrate aufgrund der geringen Emittterzahl und der geringen Photostabilität nicht möglich war.

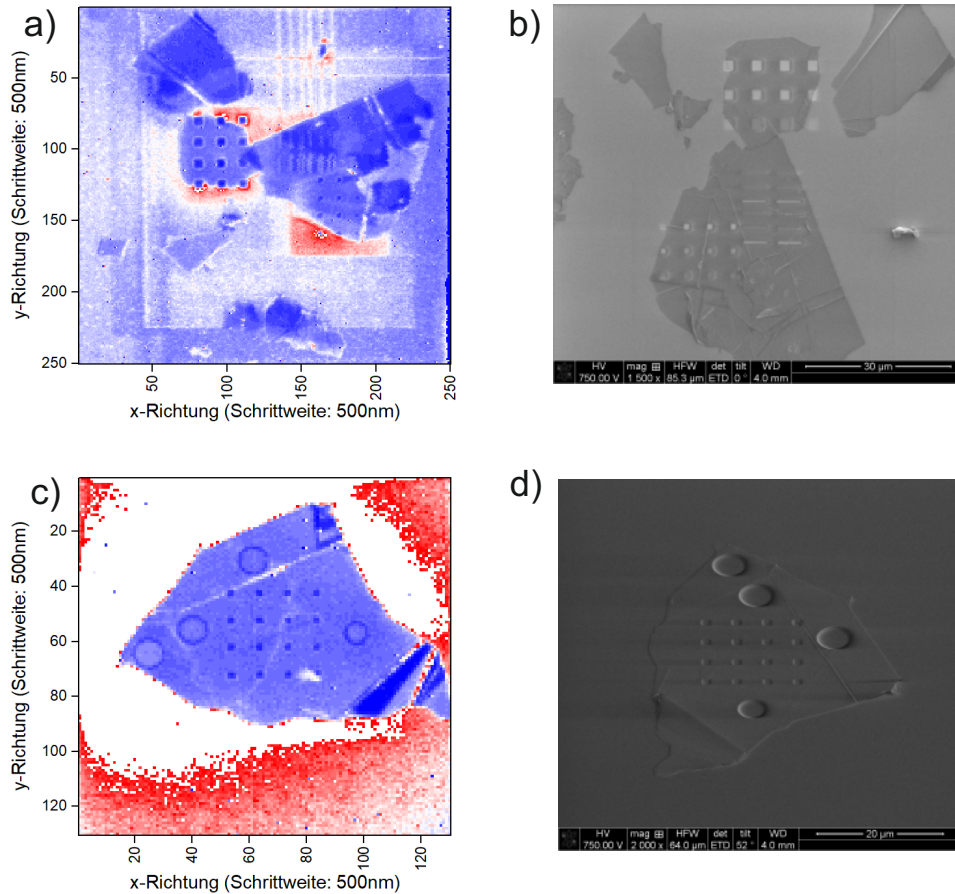


Abbildung 4.31: Mit fokussiertem Strahl aus Gallium Ionen strukturierte Monolagen Flocken hBN. *b, d)* Rasterelektronenmikroskopaufnahmen des strukturierten hBN. Entlang der Kanten der strukturierten Bereiche werden sich Defekte im Gitter bilden. *a, c)* Fluoreszenzscan über die strukturierten Flocken. Der Spiegel zeigt stark erhöhte Untergrundfluoreszenz. Die Strukturen können sichtbar gemacht werden. Neu entstandene Emmitter werden nicht beobachtet.

4.4 Fasergekoppelte Mikroresonatoren

Der folgende Abschnitt behandelt die Resultate zur Kopplung von Emittlern in Multilagen und Monolagen hBN an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Da die vollständige quantitative Beschreibung des Einflusses eines Resonators auf die spektrale und räumliche Abstrahlung eines Quantenemitters Kenntnis über den Resonator selbst voraussetzt, messen wir zunächst dessen Finesse bei der Emissionswellenlänge der Emittter sowie die Transmission durch den Resonator (Abschnitt 4.4.1). Abschnitt 4.4.2 präsentiert die Versuche zur Kopplung von Emitttern in Multilagen Flocken an diese Mikroresonatoren. Dabei stellt sich heraus, dass die angestrebten Resultate aufgrund fundamentaler Limitierungen dieses Probensystems zunächst nicht erreicht werden können. Abschnitt 4.4.3 präsentiert mit der Verwendung von Monolagen hBN als Wirtsmaterial der Emittter einen vielversprechenden alternativen Ansatz, um diese Limitierungen zu umgehen.

4.4.1 Leerer Resonator

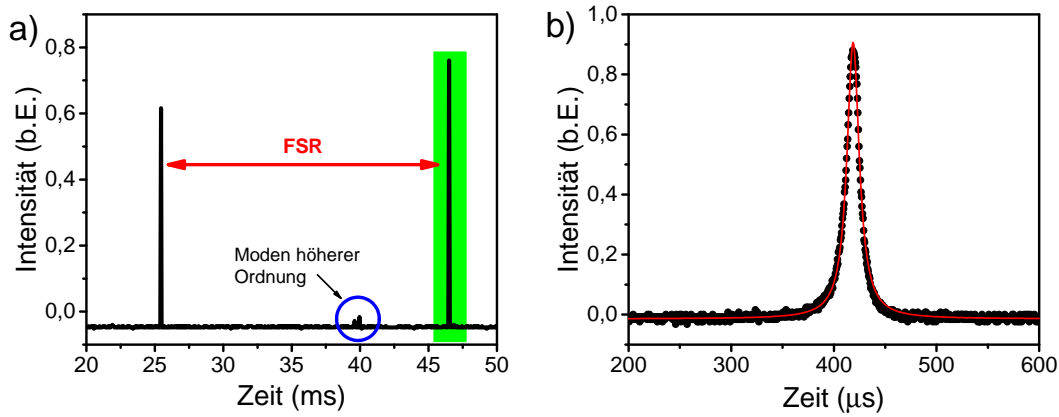


Abbildung 4.32: Messung der Resonatorfinesse bei 640 nm. *a)* Oszilloskopaufnahme zweier Resonanzlinien, während die Länge des Resonators über den Piezo verstimmt wird zur Bestimmung des freien Spektralbereichs FSR. Neben den beiden Fundamentalmoden sind außerdem höhere Moden mit deutlich geringerer Intensität sichtbar. *b)* Detailaufnahme der Resonanz einer Fundamentalmode aus *a)* zur Bestimmung der Linienbreite des Resonators.

Wir vermessen zunächst die Finesse \mathcal{F} eines Resonators mit den produzierten Plan- und Faserspiegeln für hBN Wellenlängen, wie sie in Abschnitt 3.2 vorgestellt wurden. Hierzu wird das Licht eines Diodenlasers bei 640 nm durch den Planspiegel in den Resonator eingekoppelt, während die Resonatorlänge über eine Rampenspannung am Piezo an der Auskoppelfaser kontinuierlich variiert wird. Ist die Verstimmung groß genug, werden mehrere Resonanzen, und somit der freie Spektralbereich des Resonators sichtbar

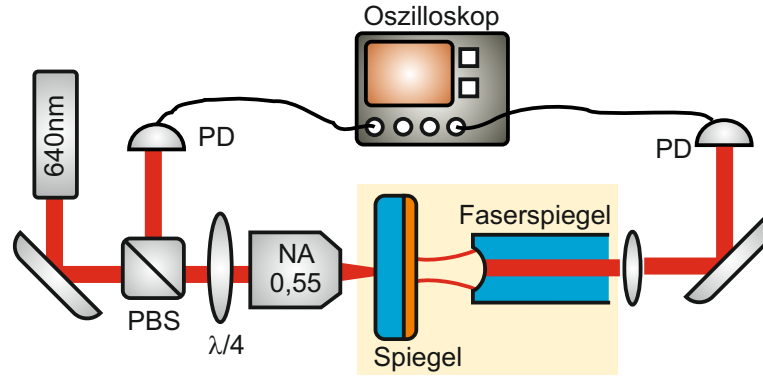


Abbildung 4.33: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur gleichzeitigen Messung der in den Resonator eingekoppelten und der durch die Auskoppelfaser transmittierten Leistung durch den Resonator auf Resonanz bei 640 nm. Erläuterung siehe Text.

(Abb.4.32a). Die entsprechende Linienbreite des Resonators erhält man im Anschluss durch eine Detailaufnahme einer dieser Resonanzlinien (Abb.4.32b). Man beachte, dass sowohl FSR als auch die Linienbreite in Gleichung 2.13 in Frequenzeinheiten gegeben ist, wohingegen das Oszilloskop Signal in Abbildung 4.32 ein Zeitsignal darstellt. Es lässt sich jedoch zeigen, dass die Beschreibung in beiden Fällen äquivalent ist. Nimmt man an, dass δL_{cav} die Längenänderung des Resonators beim Überstreichen einer Resonanz darstellt und die Längenänderung des Resonators zwischen zwei Resonanzen genau $\lambda/2$ beträgt, so folgt aus der Resonanzbedingung

$$\nu = n \cdot \frac{c}{2 \cdot L_{\text{cav}}} \quad (4.9)$$

unter der Annahme infinitesimal kleiner Längenänderungen:

$$\frac{\delta \nu}{\delta L_{\text{cav}}} = n \cdot \frac{c}{2L_{\text{cav}}^2} \quad (4.10)$$

und damit

$$\delta \nu = n \cdot \frac{c \cdot \delta L_{\text{cav}}}{2L_{\text{cav}}^2} = \frac{c}{\lambda} \frac{\delta L_{\text{cav}}}{L_{\text{cav}}}. \quad (4.11)$$

Für die Finesse gilt nach Gleichung 2.13:

$$\mathcal{F} = \frac{FSR}{\delta \nu} = \frac{\frac{c}{2L_{\text{cav}}}}{\frac{c}{\lambda} \frac{\delta L_{\text{cav}}}{L_{\text{cav}}}} = \frac{\lambda/2}{\delta L_{\text{cav}}} \quad (4.12)$$

Die Längenänderung geschieht über eine Rampenspannung an einem Piezoelement. Im linearen Bereich der Rampe können Hystereseeffekte der Piezos vernachlässigt werden. Es kann daher angenommen werden, dass die Geschwindigkeit während der Längenänderung konstant ist. Damit folgt aus obiger Beziehung.

$$\mathcal{F} = \frac{t_{\text{FSR}}}{\delta t} \quad (4.13)$$

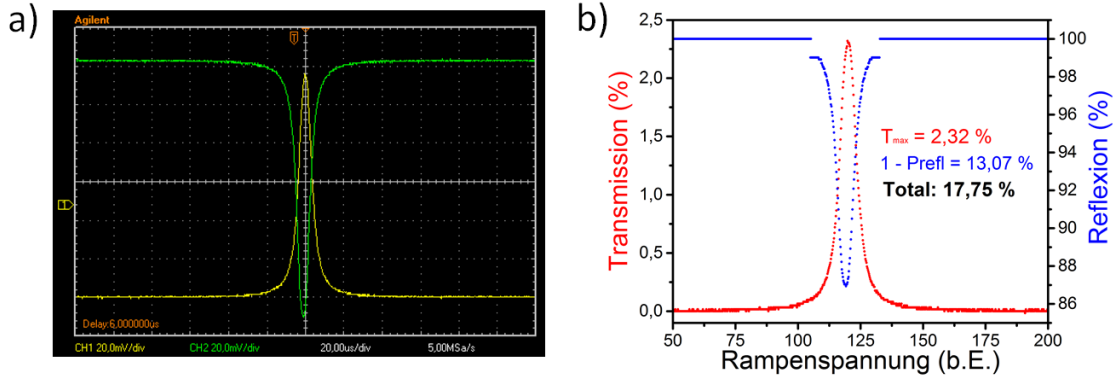


Abbildung 4.34: Messung der in den Resonator eingekoppelten Leistung und der gesamttransmittierten Leistung bei 640 nm auf Resonanz. Die Spiegel entsprechen der Beschichtung aus Abbildung 3.6 Die Strukturparameter des Mikrospiegels in der Faserfacette sind: Auf Resonanz werden 2,32 % der auf den ersten Spiegel auftreffenden Leistung durch den gesamten Resonator transmittiert. Aufgrund der nicht optimalen Modenanpassung werden lediglich 13,7 % des auf den Einkoppelspiegel auftreffenden Laserlichtes auch tatsächlich in den Resonator eingekoppelt. Das restliche Licht wird von der Rückseite des Planspiegels zurückreflektiert. Dies entspricht einem Modenüberlapp zwischen Lasermode und TEM00 Mode von 16,9 % und einem Überlapp zwischen TEM00 Mode und Fasermode von 77 %.

In Abbildung 4.32 ist beispielhaft eine Messung des freien Spektralbereichs und der Resonanzlinienbreite gezeigt. Die Resonanzlinie ist durch eine Lorentzkurve angepasst. Typischerweise liegt die gemessene Finesse für leere Resonatoren aus den Spiegeln für hBN Wellenlängen bei etwa $\mathcal{F}=4200\pm300$. Für die betrachtete Wellenlänge von 640 nm liegt dies unterhalb der durch die Vermessung der Spiegelschichten in Abschnitt 3.2 erhaltenen Werte ($\mathcal{F}=5100$). Für die in dieser Arbeit angestrebten Experimente ist dieser Unterschied, wie in Kapitel 2.4 beschrieben, jedoch vernachlässigbar. Aus der Finesse lassen sich unter zusätzlicher Kenntnis der tatsächlichen Transmissionen $T_p = 0,009\%$ und $T_f=0,11\%$ (vgl. Abschnitt 3.2) des Planspiegels und Faserspiegels nun auch die Verluste pro Umlauf des Resonators bei den verwendeten 640 nm gemäß Beziehung 2.12 bestimmen. Mit Hilfe der Transmission des Planspiegels T_p und der Faser T_f lassen sich aus der Finesse die Streuverluste pro Umlauf gemäß Gleichung 2.12 bestimmen. Hierfür legen wir die in Abschnitt 3.2 gemessenen Werte von $T_p = 0,009\%$ und $T_f=0,11\%$ statt der durch den Beschichtungsprozess angestrebten Werte zugrunde. Damit ergibt sich:

$$L = \frac{2\pi}{\mathcal{F}} - T_f - T_p = \frac{2\pi}{\mathcal{F}} - 0,11\% - 0,009\% = 0,03\% \quad (4.14)$$

Mit diesen Werten lässt sich die zu erwartende Transmission des Diodenlasers durch den Resonator im Maximum einer Resonanz bestimmen.

$$T_{\text{leer}}^{\text{theo}} = \frac{4T_f T_p}{(T_f + T_p + L)^2} = 4T_f T_p \left(\frac{\mathcal{F}}{2\pi} \right)^2 = 17,8\% \quad (4.15)$$

Die tatsächlich gemessene Transmission hängt sowohl vom Überlapp der TEM00 Mode des Resonators mit der Mode des eingestrahnten Lasers (ϵ_1) als auch vom Überlapp der Resonatormode und der geführten Mode der Auskoppelfaser (ϵ_2) ab. Damit gilt:

$$T_{\text{leer}}^{\text{gem}} = \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \cdot T_{\text{leer}}^{\text{theo}} \quad (4.16)$$

Insbesondere die Kenntnis von ϵ_2 ist erforderlich, um von der gemessenen Photonenzahl aus Emitttern im Resonator auf die tatsächliche Kopplungseffizienz zurückrechnen zu können. Abbildung 4.33 stellt den schematischen Aufbau zur gleichzeitigen Bestimmung von ϵ_1 und ϵ_2 dar. Vor der Kopplung in den Resonator passiert das polarisierte Laserlicht einen polarisierenden Strahlteiler (PBS). Zwischen PBS und Resonator befindet sich eine $\lambda/4$ -Platte, welche das vom Resonator reflektierte Laserlicht doppelt passiert und dessen Polarisationsrichtung dadurch um insgesamt 90° dreht. Dadurch wird das reflektierte Licht nun am PBS reflektiert und kann mittels einer Photodiode (PD) detektiert werden. Erfüllt der Resonator die Resonanzbedingung wird ein Einbruch in der reflektierten Leistung sichtbar, da ein Teil des auf den Planspiegel eintreffenden Lichtes nun in den Resonator eingekoppelt wird. Zeitgleich wird auf der Auskoppelseite des Resonators die transmittierte Leistung aufgenommen. Eine solche Messung ist in Abbildung 4.34a) gezeigt. Die Reflektivitäten von Planspiegel und Faserspiegel entsprechen denen aus Abbildung 3.6. Durch kontinuierliche Verstimmung des Resonators über eine Rampenspannung am Piezo bewegt sich der Resonator an einem gewissen Punkt stets über die Resonanz bei den eingestrahnten 640 nm. An dieser Position wird Licht in den Resonator eingekoppelt (grün) und gleichzeitig durch den Resonator transmittiert (gelb). Durch Normierung der gemessenen Transmissionen auf das Eingangssignal vor dem ersten Resonatorspiegel erhält man die tatsächlichen prozentualen Anteile. Die hier gezeigte Messung steht repräsentativ für mehrere Messungen auf verschiedenen Positionen des Planspiegels. In den Resonator werden $1 - P_{\text{refl}}/P_{\text{in}} = 13,1\%$ eingekoppelt, während $T_{\text{max}} = 2,3\%$ der auf den Planspiegel auftreffenden Leistung durch den gesamten Resonator transmittiert werden. Damit ergibt sich nach Gleichung 2.16 für den Modenanpassungsfaktor zwischen Laser und TEM00 Mode

$$\epsilon_1 = \frac{1 - \frac{P_{\text{refl}}}{P_{\text{in}}}}{1 - \left(\frac{T_f - T_p + L}{T_f + T_p + L} \right)^2} = 16,9\% \quad (4.17)$$

und damit für den Überlapp zwischen TEM00 Mode und Fasermode

$$\epsilon_2 = \frac{T_{\text{max}}^{\text{gem}}}{\epsilon_1 \cdot T_{\text{leer}}^{\text{theo}}} = 77\%. \quad (4.18)$$

Mit den oben berechneten Verlusten pro Umlauf sollten außerdem

$$\epsilon_{\text{out}} = \frac{T_f}{T_f + T_p + L} = 73,8\% \quad (4.19)$$

der Gesamtleistung im Resonator in Richtung der Faser ausgekoppelt werden.

4.4.2 Multilagen hBN im Resonator

Zur Kopplung der Emitter in Multilagen hBN an Mikroresonatoren bringen wir das Ausgangsmaterial mit der gleichen Technik wie in den obigen Abschnitten auf den Planspiegel auf. Um Agglomerate zu vermeiden wird die Lösung zunächst für 20 Minuten im Ultraschallbad behandelt. Partikel zwischen den Resonatorspiegeln induzieren Streuverluste. Analog zu Transmissionsverlusten reduzieren auch Streuverluste die Finesse des Resonators entsprechend Gleichung 2.12. Daher werden zur Quantifizierung dieser Streuverluste die Finesse und die Transmission des 640 nm Diodenlasers durch den Resonator auf und neben Multilagen Flocken hBN gemessen. Mit einer Schrittweite von $0,5 \mu\text{m}$ wird der Planspiegel lateral mit dem Faserspiegel abgerastert wobei an jeder Position ($0,5 \mu\text{m}/100 \text{ ms}$) die Resonatorlänge über zwei Resonanzen verstimmt und gleichzeitig die transmittierte Laserleistung über 100ms integriert wird. Abbildung 4.35a) zeigt das Ergebnis einer solchen Abrasterung. Deutlich zu erkennen ist der Einbruch der Transmission (dunkle Bereiche), wenn sich ein Partikel zwischen den Resonatorspiegeln befindet. Ein direkter Vergleich der Transmission auf Resonanz an den Positionen #1 und #2 ist in Abbildung 4.35b,c) gezeigt. Im Vergleich zum leeren Resonator in b) reduziert sich die Transmission auf Grund starker Streuverluste um einen Faktor von etwa 600. Die Finesse auf den Partikeln fällt von typischerweise $\mathcal{F}_{\text{leer}}=4200$ auf etwa $\mathcal{F}_{\text{hBN}}=150$. Dies entspricht sehr hohen Verlusten pro Umlauf von etwa:

$$L_{\text{hBN}} = \frac{2\pi}{\mathcal{F}_{\text{hBN}}} - T_f - T_p = \frac{2\pi}{150} - 0,11\% - 0,009\% = 4,1\% \quad (4.20)$$

Im Vergleich zum leeren Resonator sind diese Verluste um zwei Größenordnungen angestiegen. Die theoretisch maximal erreichbare Transmission reduziert sich damit auf

$$T_{\text{max}}^{\text{theo}} = \frac{4T_f T_p}{(T_f + T_p + L_{\text{hBN}})^2} = 4T_f T_p \left(\frac{\mathcal{F}_{\text{hBN}}}{2\pi} \right)^2 = 0,022\% \quad (4.21)$$

Für die gemessene gesamte transmittierte Leistung ergeben sich nur noch sehr geringe

$$T_{\text{hBN}}^{\text{gem}} = \frac{T_{\text{leer}}}{600} = 3,8 \cdot 10^{-3}\%. \quad (4.22)$$

Damit gilt für das Produkt aus Überlapp der Lasermode mit der Resonatormode und Überlapp der Resonatormode mit der geführten Mode der Faser

$$T_{\text{hBN}}^{\text{gem}} = \epsilon_1 \cdot \epsilon_2 \cdot T_{\text{hBN}}^{\text{theo}} = 0,172 \cdot T_{\text{hBN}}^{\text{theo}} \quad (4.23)$$

Über die beiden einzelnen Werte kann an dieser Stelle keine Aussage getroffen werden, da die Einkopplung des Lasers in den Resonator in dieser Situation nicht gemessen wurde. Der Grund für diese niedrigen Werte liegt hauptsächlich in der sehr unregelmäßigen Form und der Größe der Multilagen Flocken (vgl. Abb.4.1). Wir haben bereits diskutiert, dass die hier untersuchten Flocken eine deutlich größere Ausdehnungen besitzen, als im Datenblatt nominell angegeben. Trotz Behandlung im Ultraschallbad konnten

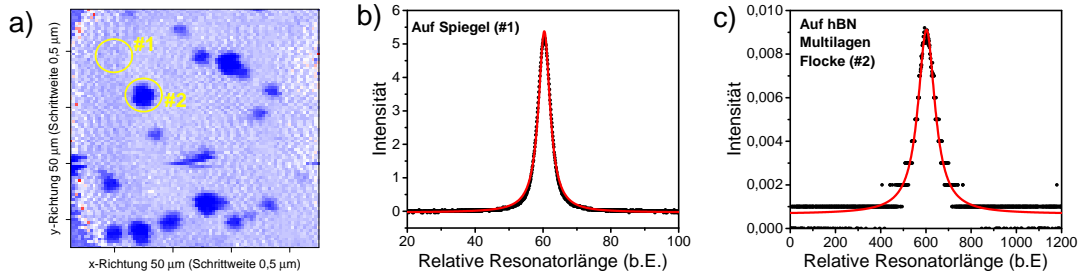


Abbildung 4.35: *a)* Transmission des 640 nm Diodenlasers durch den Resonator, während der Faserspiegel lateral über den Planspiegel über einen Bereich von $50\,\mu\text{m}^2$ mit einer Schrittweite von $0,5\,\mu\text{m}$ bewegt wird. An jeder Position wird der Resonator über zwei Resonanzen verstimmt und gleichzeitig die Transmission des eingestrahnten Lasers aufgenommen. Deutlich zu erkennen ist der Einbruch der Transmission, wenn sich eine hBN Multilagen Flocke zwischen den Resonatorspiegeln befindet (dunkler Fleck). *b)* Mit Photodiode gemessene Transmission durch den leeren Resonator auf beliebiger Stelle auf dem Spiegel. *c)* Mit Photodiode gemessene Transmission, wenn sich eine Multilagen Flocke im Resonator befindet. Die Transmission auf einem Flocken bricht aufgrund starker Streuverluste um einen Faktor 600 im Vergleich zum *leeren* Resonator ein. Die Verluste pro Umlauf erhöhen sich von $L=0,03\,\%$ auf $L_{\text{hBN}}=4,1\,\%$ um mehr als zwei Größenordnungen.

auch nicht alle etwaigen Agglomerate aufgelöst werden. Aber selbst einzelne Flocken haben oft einen größeren Durchmesser als $2\,\mu\text{m}$.

In Abschnitt 2.2.4 wurde der Strahldurchmesser der Resonatormode auf dem Planspiegel in der vorliegenden Geometrie zu etwa $1\,\mu\text{m}$ bestimmt. Damit liegt dieser noch unterhalb der Ausdehnung der Flocken. Zusammen mit der sehr unregelmäßigen Form der Flocken induziert dies sehr starke Streuverluste und behindert den Aufbau einer stabilen Resonatormode auf dem Planspiegel. Tatsächlich konnte in ähnlichen Resonatorkopplungsexperimenten mit Nanodiamanten mit einer Größe von etwa $100\,\text{nm}$ bereits früher ein Abfall in der Finesse beobachtet, wenn sich der Nanodiamant zwischen den Spiegeln befunden hat. In diesem Fall sank die Finesse jedoch deutlich weniger von einem ursprünglichen Wert von 3600 auf 2600 ab [45]. Darüber hinaus wurde in einem weiteren Kopplungsexperiment, in dem der Resonator aus 2 Mikrosiegeln in Faserfacetten aufgebaut war und der Nanodiamant auf einem der Mikrospiegel abgelegt wurde, keine verringerte Finesse beobachtet [46].

Es soll dennoch demonstriert werden, dass die durch die Multi-Lagen Flocken induzierten Streuverluste tatsächliche Kopplungsversuche in diesem Material behindern. Hierzu identifizieren wir zunächst mit dem in Abschnitt 3.2 vorgestellten Aufbau geeignete Kandidaten zur Resonatorkopplung. Abbildung 4.37a) zeigt einen auf der Probe abgerasterten Bereich von $300\times 300\,\mu\text{m}^2$. Die dielektrischen Spiegel zeigen unter kontinu-

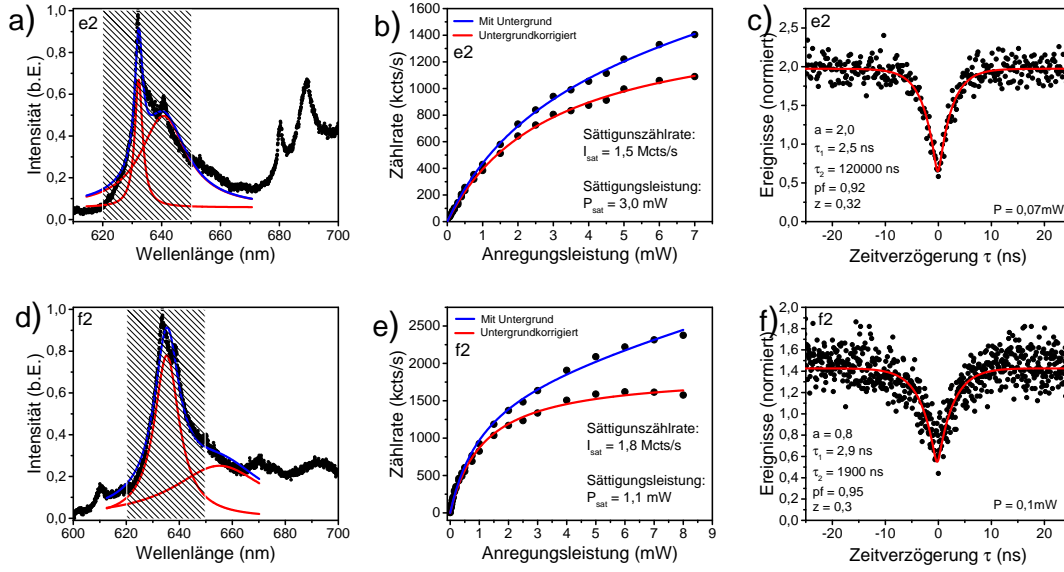


Abbildung 4.36: a,d) Spektren, b,e) Sättigungsmessungen und c,f) $g^{(2)}$ -Funktionen an zwei voruntersuchten Emitttern auf einem dielektrischen Spiegel zur Kopplung an Mikroresonatoren.

ierlicher Anregung bei 532 nm und Anregungsleistungen von 0,5 mW in unbehandeltem Zustand eine Untergrundzählrate von etwa 50 kcts/s, die jedoch auf Zeitskalen von einigen Sekunden beinahe vollständig ausbleicht. Dies kann zur Orientierung auf der Probe genutzt werden. Der in Abbildung 4.37a) markierte Bereich ist in b) vergrößert dargestellt. In diesem Bereich können drei geeignete Emitter zur Resonatorkopplung gefunden werden. Für Emittter e2 und f2 sind Spektren, Sättigungsmessungen und jeweils eine $g^{(2)}$ -Funktion in Abbildung 4.36 gezeigt. Analog zu obigen Kapiteln kann auch nur hier das auf zwei Emittter erweiterte Modell die $g^{(2)}$ -Messungen reproduzieren. Alle aus den Anpassungen gewonnenen Parameter sind in den jeweiligen Abbildungen aufgelistet. Wir ersetzen nun gemäß der Beschreibung in Abschnitt 3.2 das Objektiv, mit dem zuvor die Fluoreszenz der Emittter gesammelt wurde, durch den strukturierten Faserspiegel ($R=15 \mu\text{m}$, $D=10 \mu\text{m}$, $z=0,8 \mu\text{m}$). Analog zu obigem Vorgehen kann über eine Messung der Lasertransmission durch den Resonator bei gleichzeitiger lateraler Abrasterung des Spiegels der relevante Bereich auch im Resonataraufbau sichtbar gemacht werden. In Abbildung 4.37c) können auf diese Weise die voruntersuchten Flecken identifiziert werden. Wie bereits bei der Resonatorcharakterisierung eingangs beobachtet, erleidet die Transmission an den Positionen der Multilagen Flecken dramatische Einbrüche um fast drei Größenordnungen. Durch Sammeln der Fluoreszenz in die Faser unter kontinuierlicher Anregung mit 532 nm können im letzten Schritt die ausgewählten Emittter identifiziert werden und zwischen die Resonatorspiegel gebracht werden (vgl. Abb. 4.37d). In Abbildung 4.38 sind die Fluoreszenzspektren zu sehen, die durch den Faserspiegel gesammelt wurden. Während im leeren Resonator Moden erkennbar waren, können

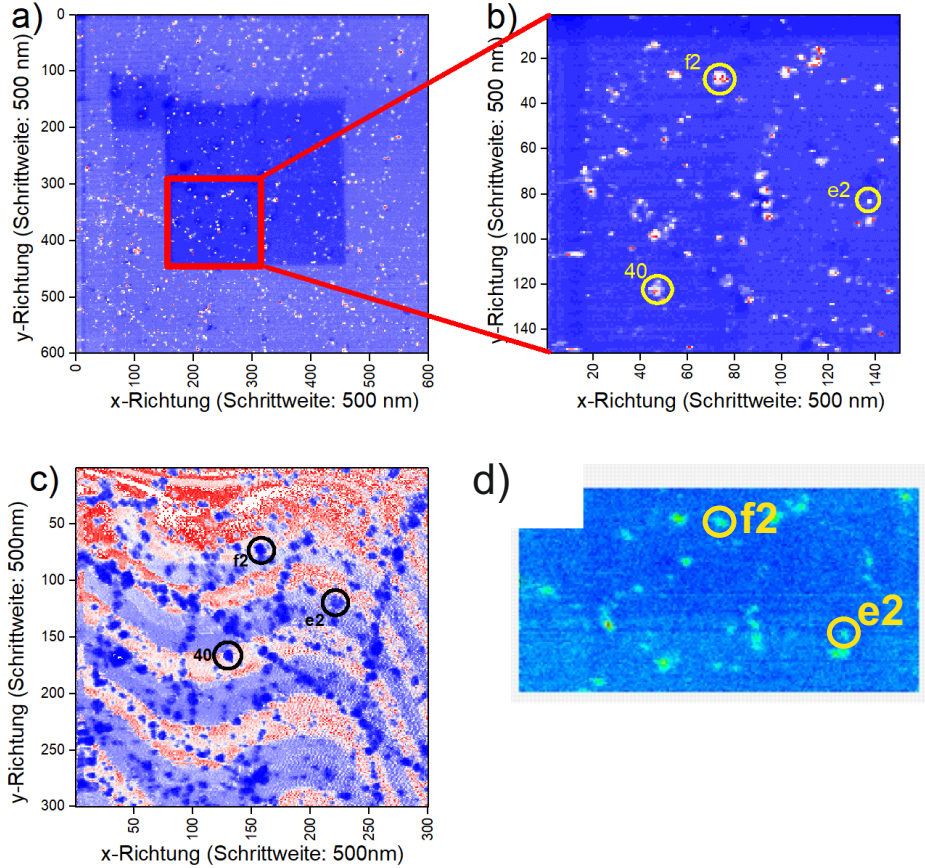


Abbildung 4.37: *a)* Abgerasteter Bereich mit hBN Multilagen Flocken auf dielektrischem Planspiegel. *b)* Vergrößerung des in *a)* markierten Bereichs mit drei Emitttern zur Kopplung an Mikroresonatoren. *c)* Transmissions des 640 nm Diodenlasers durch den Resonator über den in *a)* gezeigten Bereich. Während der Spiegel in x-y-Richtung bewegt wird, variiert die Resonatorlänge nach jedem Schritt über zwei Resonanzen. Multilagen Partikel induzieren innerhalb des Resonators Streuung und reduzieren die Transmission (Dunkle Bereiche). Die Flocken, die die vorher vermessenen Emittter 40, e2 und f2 beinhalten, können auch hier identifiziert werden. *d)* Fluoreszenzscan durch den Resonator unter kontinuierlicher, nicht resonanter Anregung. Gemäß Abschnitt 3.2 wird die Fluoreszenz direkt durch den Faserspiegel gesammelt. Die Emittter können auch hier wieder gefunden werden.

diese im relevanten Wellenlängenbereich zwischen 620 nm und 670 nm nicht beobachtet werden. Aufgrund der hohen Streuverluste findet keine Auskopplung der Emission der Emittter im Bereich der Null-Phononen Linie in die Auskoppelfaser statt. Transmission durch die Faser erhält man erst ab einer Wellenlänge von etwa 680 nm. Ab dort öffnet der Faserspiegel und die Transmission steigt an. Tatsächlich bewegt sich die

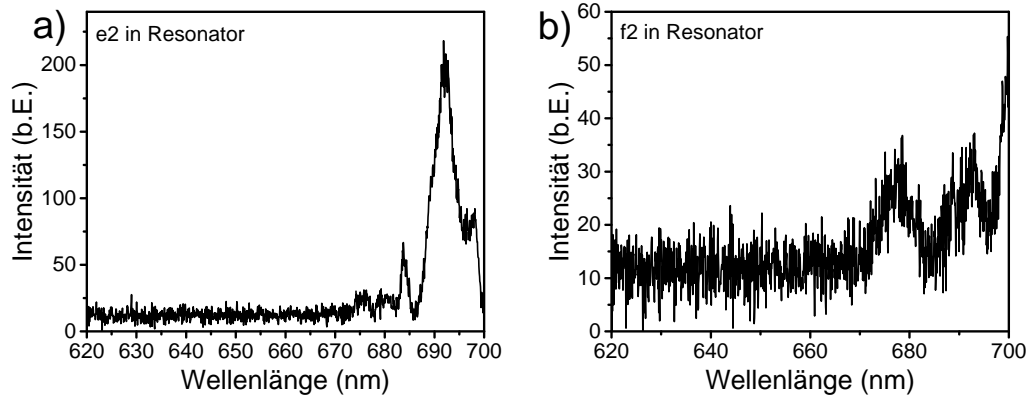


Abbildung 4.38: Spektren der in Abbildung 4.37 untersuchten Emittoren, gesammelt durch den Faserspiegel im Resonator. Aufgrund starker Streuverluste kann sich keine Stehwelle im Wellenlängenbereich zwischen 620 und 670 nm aufbauen. Transmission erhält man ab einer Wellenlänge von etwa 680 nm. Ab hier öffnet der Faserspiegel und die Transmission steigt deutlich an.

Fluoreszenz bei Filterung zwischen 620-640 nm in dieser Messung im Bereich der Dunkelzählrate der Detektoren. Umgangen werden kann dieses Problem in diesem Material nur, wenn Emittor explizit in Flocken geringerer Ausdehnung gesucht werden. Dies ist insofern herausfordernd, als dass ein simultaner Abgleich zwischen Rasterelektronenmikroskop Aufnahmen und Fluoreszenzscans nötig ist.

Abschließend lässt sich feststellen, dass die in dieser Arbeit untersuchten Multilagen Flocken aufgrund ihrer Oberflächenbeschaffenheit kein geeignetes Wirtsmaterial für eine Kopplung von Einzelphotonenquellen an Faserresonatoren darstellen. Als alternativen Ansatz gehen wir im nächsten Teil der Arbeit über zur Untersuchung von Monolagen hBN, in denen bereits zuvor schon Emission der selben Art wie in den Multilagen beobachtet werden konnte. Wir werden sehen, dass die Verwendung von großflächigen Monolagen Flocken signifikante Vorteile in den durchzuführenden Kopplungsexperimenten bieten.

4.4.3 Monolagen hBN im Resonator

Abbildung 4.39 zeigt einen Resonator-Transmissionscan über eine Monolagen Flocke, wie er in obigem Abschnitt bereits erläutert wurde (vgl. Abbildung 4.35). Man beachte, dass es in Abbildung 4.39 scheint, als wären die Transmissionen an den Positionen 2 und 4 deutlich verschieden. Ein Vergleich mit Tabelle 4.6 zeigt jedoch, dass an beiden Positionen innerhalb der Fehlergrenzen die gleiche Finesse gemessen wurde. An den in Abb. 4.39 gekennzeichneten Positionen wurde die Finesse analog zu Abschnitt 4.4.1 mit Hilfe von Photodioden bestimmt. Aus der reinen Abtastung des Spiegels und der Mes-

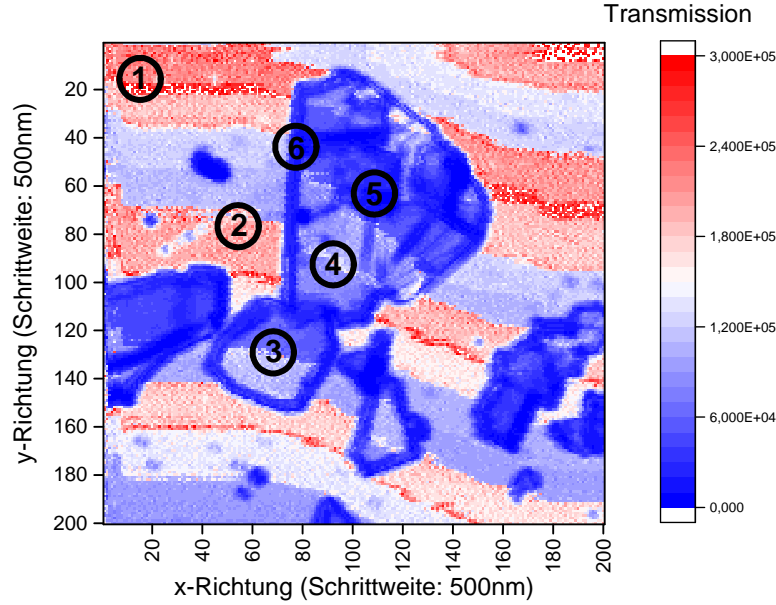


Abbildung 4.39: Transmissionsmessung nach der selben Methode wie in Abbildung 4.35. Im Unterschied zu den Multilagen enthalten die Monolagen Flocken aufgrund ihrer deutlich größeren lateralen Ausdehnung Bereiche in ihrem Inneren, an denen keine bis sehr wenige Streuverluste auftreten. Lediglich entlang der Ränder und in defektreichen Regionen in denen mehrere Lagen übereinander liegen, treten die gleichen starken Verluste auf wie im Fall der Multilagen. Zur Verifizierung wurde an allen markierten Positionen die Finesse bestimmt. Die Werte sind in Tabelle 4.6 zusammengefasst.

sung der transmittierten Photonen kann nicht direkt auf die Finesse geschlossen werden. Auf der dargestellten Flocke konnte bereits ein Emitter identifiziert werden (vgl. Abschnitt 4.3). Als Referenz messen wir zunächst die Finesse abseits des hBNs (Positionen 1 und 2). Wie zuvor liegt diese bei etwa $\mathcal{F} = 4200$. Auf dem Flocken selbst ist zu erkennen, dass in den inneren Bereichen (Position 3 und 4), in denen eine ebene Monolage vorliegt, fast keine Streuverluste auftreten. Dementsprechend wird hier keine verringerte Finesse gemessen. Dagegen herrschen entlang des Randes (Position 5) und in defektreichen Bereichen auf dem Flocken selbst, wo mehrere Lagen aufeinander stoßen (Position 6), wiederum sehr hohe Streuverluste, was sich auch deutlich in der Finesse bemerkbar macht. In diesen Bereichen fällt sie auf Werte bis $\mathcal{F} = 250$. Alle gemessenen Werte an den markierten Positionen sind in Tabelle 4.6 zusammengefasst.

Eine optimale Kopplung zwischen Einzelphotonenemittern in hBN und Mikroresonatoren erfordert demnach eine gezielte Aktivierung dieser Emitter an einer Position innerhalb einer lateral weit ausgedehnten Monolage ($>50\mu\text{m}$). Wir haben in Abschnitt 4.3 Experimente zur gezielten Aktivierung von Emitttern diskutiert. Um Resonatorkopplungsexperimente zu ermöglichen, muss die Emitteraktivierung jedoch nicht invasiv er-

Position	Finesse \mathcal{F}
1 Spiegel	4200 ± 540
2 Spiegel	4400 ± 370
3 hBN	4200 ± 200
4 hBN	4200 ± 300
5 hBN	350 ± 35
6 hBN	250 ± 50

Tabelle 4.6: Zusammenstellung der Messungen der Finesse an den Positionen aus Abbildung 4.39.

folgen. Eine Strukturierung durch den fokussierten Ionenstrahl erzeugt einerseits neue Kanten, an denen sich Emitter ausbilden können, andererseits findet man jedoch an diesen Kanten unerwünschte Streuung aus der Resonatormode, was effiziente Kopplung behindert. Tatsächlich konnte in den Multilagen Flocken zuvor bereits ein Emitter mit dieser Methode erzeugt werden. Erst kürzlich wurde gezeigt, dass die Emitterdichte durch Bestrahlung mit hochenergetischen Elektronen (MeV) in hochreinen Multilagen, isotopisch reinem hBN, kohlenstoffreichen Multi- und Monolagenmaterial dramatisch erhöht werden konnte [196]. Um eine Beschädigung der Spiegelschichten auszuschließen und keine unerwünschte Untergrundfluoreszenz zu generieren erfolgt im Idealfall die Aktivierung der Emitter vor der Übertragung des Wirtsmaterials auf den Resonatorspiegel. Eine detaillierte Studie über die Photostabilität der Emitter während des Exfoliationsvorgangs ist mir jedoch nicht bekannt.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Diese Arbeit behandelte die nichtklassische Lichtemission aus Punktdefekten in kommerziell erhältlichen Multilagen und Monolagen hexagonalen Bornitrids und deren Inkorporation in fasergekoppelte Mikroresonatoren zur Realisierung einer effizienten, schmalbandigen Einzelphotonenquelle zu weiterführenden Anwendungen im Bereich der Quanteninformation. Die durchgeführten Experimente gliedern sich hierbei wie folgt:

Spektroskopie an Multilagen Flocken hBN

Die hier berichteten Emitter in Multilagen hBN gehören mit Emissionsraten von typischerweise 1-5 Mcts/s und Lebensdauern der angeregten Zustände im Bereich zwischen 1-10 ns zu den hellsten, jemals berichteten Quellen nichtklassischen Lichts. Es wurde gezeigt, dass diese spezielle Klasse von Quantenemittern eine charakteristische spektrale Form aufweist, die sich bei Raumtemperatur aus insgesamt vier Spektrallinien zusammensetzt. Die Literatur geht bislang davon aus, dass es sich bei diesen Spektrallinien um eine Null-Phononen-Linie mit drei angrenzenden Phononenseitenbanden handelt, ein einzelner lokalisierter Emitter demnach eine Einzelphotonenquelle darstellt [64–72]. Entgegen dieser Berichte liefert diese Arbeit starke und in sich konsistente Hinweise darauf, dass es sich tatsächlich jedoch stets um zwei elektronische Übergänge mit je einem angrenzenden Phononenseitenband handelt. Bestätigt wird diese These unter anderem durch Messungen der Photonenstatistik in $g^{(2)}$ -Intensitätskorrelationsmessungen. Es wurde gezeigt, dass diese Messungen auch unter Einbeziehung aller limitierender Faktoren wie unkorreliertem Untergrund aus dem Wirtsmaterial und elektronischer Limitierungen in den Detektionseinheiten nicht durch die Annahme einer reinen Einzelphotonenquelle reproduziert werden können. Eine erfolgreiche Beschreibung gelingt unter der Annahme zweier elektronischer Übergänge, deren Oszillatorstärken den zugehörigen Spektren der Emitter entnommen werden können. Bestätigt wird diese Annahme weiterhin durch Messung der Lebensdauer angeregten Zustände im Rahmen von TCSPC-Messungen, in denen deutlich zwei unterschiedliche Zerfallskonstanten in der gleichen Größenordnung sichtbar werden. In Messungen der Polarisation der Emission

aus den Defekten konnten wir sehen, dass sich die Intensitäten der mit den beiden elektronischen Übergängen assoziierten Linien mit sich verändernder Polarisationsrichtung unterschiedlich stark ändern. Ein weiterer Hinweis darauf, dass es sich bei beiden Linien um unabhängige elektrische Dipole handelt. Darüber hinaus zeigte ein Vergleich eines Raumtemperaturspektrums mit einem Spektrum bei kryogenen Temperaturen, dass bei tiefen Temperaturen eine klar definierte, zweite Spektrallinie sichtbar wird. Beide Linien schieben in Abhängigkeit der Temperatur mit einem T^3 Gesetz, welches typisch für elektronische Übergänge in Festkörpersystemen ist [133, 134]. Außerdem unterliegen beide Linien bei tiefen Temperaturen einer Gaußverbreiterung, was auf inhomogene Verbreiterungsmechanismen beider Übergänge wie beispielsweise spektrale Diffusion schließen lässt [129–131]. Auch dies ist ein typisches Resultat in der Untersuchung elektronischer Übergänge in festkörperbasierten Quantenemittern. Die beobachteten beiden Linien bei tiefen Temperaturen bieten in künftigen Experimenten durch Kreuzkorrelationsmessungen in der Photonenstatistik die Möglichkeit, die Annahme zweier unabhängiger, elektronischer Übergänge zu bestätigen.

In Übereinstimmung mit Berichten in der Literatur detektieren wir auch hier Spektrallinien über einen sehr weiten Wellenlängenbereich zwischen 600 nm und 750 nm. Die beiden als Phononenseitenbänder identifizierten Linien erscheinen innerhalb der Fehlergrenzen stets in einem Abstand von etwa 165 meV von beiden als elektronische Übergänge angenommenen Spektrallinien. Dieser Wert entspricht einer bekannten Gittermode des hBN, an dessen Stelle ebenso ein Maximum in der Phononenzustandsdichte des hBN liegt [123]. Eine ausreichende Erklärung für die große Streuung in den Zentralwellenlängen der Emission konnte bislang noch nicht gegeben werden. Zur Diskussion steht, ob Verspannungen im Material bereits ausreichen, um diese große Streuung zu verursachen oder ob es sich um mehrere unterschiedliche Defekte im hBN Gitter handelt, die vergleichbare Energieniveaustrukturen ausbilden.

Die Arbeit berichtete darüber hinaus über eine quantitative Studie zur mehrstufigen Aktivierung von Quantenemittern in Multilagen hBN durch Ausheizen der Probe bei 900° im Vakuum, Elektronenbestrahlung in einem Rasterelektronenmikroskop und erneutes Ausheizen bei 900°. Es wurde gezeigt, dass jeder dieser Prozessschritte tatsächlich zur Aktivierung der typischen Emission führen kann. Jedoch muss als abschließendes Resultat festgehalten werden, dass die in der Literatur berichtete verbesserte Photostabilität der Emission nicht beobachtet wird. Tatsächlich sind laut den Ergebnissen dieser Arbeit weiterführende Prozessschritte nicht unbedingt notwendig, da sich im Ausgangsmaterial bereits ausreichend Emitter entsprechend guter spektraler Qualität befinden.

Spektroskopie an Monolagen Flocken hBN

Als alternatives Probensystem wurde außerdem Monolagen hBN auf diese charakteristische Emission hin untersucht. Bei diesen Monolagen Flocken handelt es sich um Bruchstücke aus einer größeren, zusammenhängenden Monolagenschicht, die für uns in der Arbeitsgruppe von Dirk Englund (Massachusetts Institute of Technology) auf einen dielektrischen Spiegel für spätere Inkorporation in fasergekoppelte Resonatoren trans-

feriert wurden. Diese Bruchstücke besitzen unregelmäßige Form, weisen jedoch laterale Ausdehnungen zwischen etwa $5\text{-}50\text{ }\mu\text{m}$ auf. Während der Abrasterung im Konfokalmikroskop werden lokalisierte Emittter insbesondere entlang des Randes der Flocken sichtbar. Obwohl lediglich in drei Fällen die auch in den Multilagen-Flocken berichtete spezielle Klasse von Emitttern beobachtet werden konnte deutet dies darauf hin, dass tatsächlich Defekte in der Gitterstruktur für lokalisierte Emission verantwortlich sind. Obwohl in den erwähnten drei Fällen die typische Linienstruktur im Spektrum der Emission erkennbar war, wurde jedoch deutlich, dass die beobachteten Spektrallinien mit $\Delta\lambda_1 = 11,9\text{ nm}$, $\Delta\lambda_1 = 4,6\text{ nm}$ und $\Delta\lambda_1 = 9,0\text{ nm}$ deutlich breitere Linienbreiten als solche in den Multilagen Flocken, deren Linienbreite gemittelt über 37 Emittter bei $\Delta\lambda = 2,79\text{ nm}$ liegt, zeigen. Ursache hierfür ist vermutlich die Oberflächennähe der Defekte in den Monolagen Flocken. Versuche zur Erzeugung von Defekten in den Monolagen durch gezielte Elektronenbestrahlung, Behandlung in Argon Plasma und Behandlung mit einem fokussierten Ionenstrahl aus Gallium-Ionen blieben im Rahmen dieser Arbeit erfolglos.

Fasergekoppelte Mikroresonatoren

Neben der Spektroskopie an beiden verschiedenen Probensystemen ist ein weiterer Hauptbestandteil der Arbeit die Kopplung der Quantenemitter an fasergekoppelte Mikroresonatoren. Die Motivation hierin lag in der weiteren Erhöhung der Emissionsraten von Einzelphotonenemittern. Ein für entsprechende Kopplungsexperimente von NV-Zentren entwickeltes Modell war bereits früher in der Lage, Übergänge in ein Purcell-überhohes Regime auch in Raumtemperaturexperimenten vorherzusagen, sollten Emittter verwendet werden, deren Linienbreiten bereits in der Größenordnung der Resonatorlinienbreite liegen [45, 46, 49]. Eine Voraussetzung, die durch die hier untersuchte Emission aus hBN erfüllt wird. Die in der Arbeit konstruierten Resonatoren bestehen aus einem Planspiegel, auf dem sich die Flocken des hexagonalen Bornitrids befinden und einem Mikrospiegel, der mit Hilfe eines fokussierten Ionenstrahls aus Gallium-Ionen in die Endfacette einer optischen Glasfaser einbeschrieben wurde. Bei diesem Mikrospiegel handelt es sich um einen konkav gekrümmten Spiegel mit einer Tiefe von etwa $z=800\text{ nm}$, Krümmungsradius $R=15\text{ }\mu\text{m}$ und einem Durchmesser von etwa $10\text{ }\mu\text{m}$. Resonatoren mit möglichst kleinem Modenvolumen sind anzustreben, da die Kopplung zwischen dem Emittter und dem Lichtfeld innerhalb des Resonators mit $1/\sqrt{V_{\text{mod}}}$ skaliert, wobei V_{mod} das Modenvolumen der Resonatormode bezeichnet. Bei beiden Spiegeln handelt es sich um Bragg-Spiegel. Die Bragg-Schichten wurden durch Ionen-Strahl-Abscheidung auf die Spiegel aufgebracht um die angestrebten Reflektivitäten zu erreichen. Diese wurden so gewählt, dass zum einen eine moderate Finesse des Resonators von etwa 4000-5000 im relevanten Wellenlängenbereich erreicht wird, zum anderen die optische Faser jedoch als Hauptauskoppelkanal für die Photonen innerhalb des Resonators dient. Auf diese Weise ist die Resonatortransmission direkt fasergekoppelt und die Photonen stehen unmittelbar für weiterführende Experimente zur Verfügung. Das Modell sagt voraus, dass bereits mit einer Finesse von etwa $\mathcal{F}=4000$ und rela-

tiv einfach zu realisierenden Resonatorlängen von etwa $3\,\mu\text{m}$ bereits etwa 40 % aller von typischen Quantenemittern in hBN emittierten Photonen in die Grundmode dieser Resonatoren gekoppelt werden können. Gleichzeitig können bereits in diesem Regime Purcell-Faktoren von etwa $F_p=2$ erwartet werden. Vermessungen der mit den hier beschriebenen Randbedingungen konstruierten Resonatoren lieferten eine typische Finesse von etwa $\mathcal{F}=4200\pm300$ und erreichen somit die erforderlichen Spezifikationen.

Multilagen hBN im Resonator

Ziel dieses Teils der Arbeit war die Überhöhung der beschriebenen Fluoreszenz aus Multilagen Flocken hBN durch Kopplung an eine Resonatormode. Um einen Resonatoreffekt quantitativ beschreiben zu können müssen zunächst Emitter im freien Raum voruntersucht werden. Hierfür wurden zwei typische Kandidaten gefunden, die auch im Resonatoraufbau sowohl in Fluoreszenzscans als auch in Lasertransmissionsscans erneut identifiziert werden konnten. Allerdings war es nicht möglich, innerhalb des Stopbandes der Spiegel, Fluoreszenz aus diesen Emitttern in die Auskoppelfaser des Resonators zu koppeln. Als Hauptgrund hierfür konnten dramatisch erhöhte Streuverluste zwischen den Resonatorspiegeln identifiziert werden, die durch die Multilagen Flocken zwischen den Spiegeln induziert werden. Ein Vergleich zwischen der Finesse des leeren Resonators verglichen mit der Finesse des Resonators mit Multilagen Flocke zwischen den Spiegel zeigte einen Einbruch um etwa eine Größenordnung. Ein direkter Vergleich der Transmission eines Diodenlasers auf und neben einer hBN Flocke zeigte einen Einbruch der Lasertransmission durch den Resonator auf Resonanz mit der Wellenlänge des eingestrahlten Laserlichtes um einen Faktor von etwa 600. Den Hauptgrund für diese dramatische Erhöhung der Streuverluste führt die Arbeit auf die Größe der Multilagen Flocken von $>2\,\mu\text{m}$ zurück. Wie in Rasterelektronenmikroskop Aufnahmen zu sehen ist, weisen diese Flocken außerdem eine sehr unregelmäßige Form auf. Der Strahldurchmesser der Resonatormode auf dem Planspiegel liegt mit den gegebenen Parametern bei etwa $1\text{-}2\,\mu\text{m}$. Damit überdeckt die sehr unregelmäßige Oberfläche der hBN Flocke die gesamte Resonatormode auf dem Planspiegel, was in den gemessenen Streuverlusten resultiert.

Monolagen hBN im Resonator

Um die unregelmäßigen Oberflächen zu umgehen wurde als Alternative außerdem Monolagen Material als Wirtsmaterial für Emitter zwischen die Resonatorspiegel eingebracht. Es konnte nachgewiesen werden, dass in Flocken ausreichender lateraler Ausdehnung ($\approx 50\,\mu\text{m}$) Bereiche existieren, in denen die sich die Finesse des Resonators nicht signifikant verringert, die Transmission somit annähernd konstant bleibt. Lediglich entlang der Kanten der Flocken treten die schon bereits vorher beobachteten Streuverluste auf. Vorteilhaft wäre es demnach, durch nichtinvasive Methoden wie Ausheilen der Probe, Emitter in einem solchen ebenen Bereich zu aktivieren.

Ausblick

In alternativen 2-dimensionalen Materialien wie atomar dünnen Lagen Übergangsmetall Dichalkogeniden wie Wolframdiselenid (WSe_2) und Wolframdisulphid (WS_2) ist es durch Positionierung auf Nanoröhrchen gelungen, bereits zuvor zufällig in diesen Materialien beobachtete Emitter gezielt an vorbestimmten Positionen zu erzeugen [201]. In künftigen Experimenten könnte diese Methode auch auf Monolagen hBN angewandt werden und Wege erprobt werden, diese in entsprechenden Mikroresonatoren zu untersuchen. Herausfordernd an dieser Stelle wird sein, direkten Zugang zu einer Spiegelfläche unterhalb des hBN zu besitzen. So muss eine Quarzglasoberfläche als Spiegelsubstrat entsprechend strukturiert werden, im Anschluss mit passenden Braggsschichten beschichtet werden und als letzten Schritt das hexagonale Bornitrid auf den strukturierten Spiegel transferiert werden. Herausfordernd ist hierbei, dass der Transfer der Monolagen Flocken deterministisch auf einen mit Nanoröhrchen strukturierten Bereich erfolgen muss. An dieser Stelle kann beispielsweise auf bereits demonstrierte Pick-And-Place Methoden zurückgegriffen werden, bei denen Nanomanipulatoren in Rasterlektronenmikroskopen oder Spitzen in Rasterkraftmikroskopen verwendet wurden, um Nanopartikel gezielt von einem Substrat auf ein anderes zu transferieren [46, 166, 205]. Die in [201] durch Verspannungen induzierten Emitter in WSe_2 und WS_2 weisen darüber eine erhöhte spektrale Stabilität gegenüber den zufällig in diesen Proben erscheinenden Emittern auf. Dieser Effekt wäre für die verspannungsinduzierte Emitteraktivierung in hBN Monolagen außerdem von großer Bedeutung, da sich insbesondere Emitter in diesem Material als äußerst instabil herausgestellt hat.

Anhang A

Kryostat

Die in diesem Abschnitt vorgestellte Arbeit ist in Zusammenarbeit mit Marcel Schmidt entstanden. Die gezeigten Graphen sind angelehnt bzw. entnommen aus [206]

Zur Realisierung fasergekoppelter Mikroresonatoren bei flüssig Helium Temperaturen wurde im Laufe der Arbeit ein speziell für diese Zwecke angefertigter pulsröhrengetriebener closed-cycle Kryostat im Labor installiert. Dieser Abschnitt behandelt den Kryostaten sowie dessen Funktionsprinzip.

Bei dem in dieser Arbeit aufgebauten Kryostaten handelt es sich um einen zwei-Stufen pulsröhrengetriebenen closed-cycle Kryostaten der Firma *CryoVac*. Ein Pulsröhrenkühler basiert auf dem Prinzip eines Stirlingsmotors mit Regenerator. Ein Regenerator ist ein gasdurchlässiges Material mit hoher Wärmeleitfähigkeit (beispielsweise ein Metallgeflecht). Durch einen Kolben wird das Helium periodisch komprimiert und expandiert. Kolben und Regenerator bewegen sich dabei so zueinander, dass der Regenerator das Gas in der komprimierten Phase auf dem Weg zum kalten Ende abkühlt und damit selbst erwärmt wird. Mit dieser gespeicherten Wärme kann der Regenerator das Gas in der expandierten Phase des Prozesses auf seinem Weg in den warmen Bereich vorwärmen. Der Pulsröhrenkopf am Kryostaten selbst benötigt dabei keine mechanische beweglichen Teile. Der zur Kompression und Expansion verwendete Kolben befindet sich in einem weit entfernten Helium-Kompressor. Dadurch werden Erschütterungen am Kryostaten selbst vermieden, was in einer erhöhten Stabilität optischer Experimente in der Probenkammer des Kryostaten resultiert. In diesem Vorgang wird die Deckenplatte der Probenkammer des Kryostaten gekühlt. Über ein Kontaktgas (^4He), welches in thermischem Kontakt mit der Deckenplatte steht, wird im Anschluss der gesamte Probenraum gekühlt.

Abbildung A.1 zeigt schematisch einen Schnitt durch die Längsachse des Kryostaten. Die Hauptkonstruktion besteht aus drei Ebenen. Die äußerste Ebene bildet ein Rezipient, in dem vor der Inbetriebnahme ein Isolationsvakuum ($p < 10^{-4}$ mbar) aufgebaut wird, gefolgt von einem Strahlungsschild zur thermischen Isolierung. Die innerste Ebene

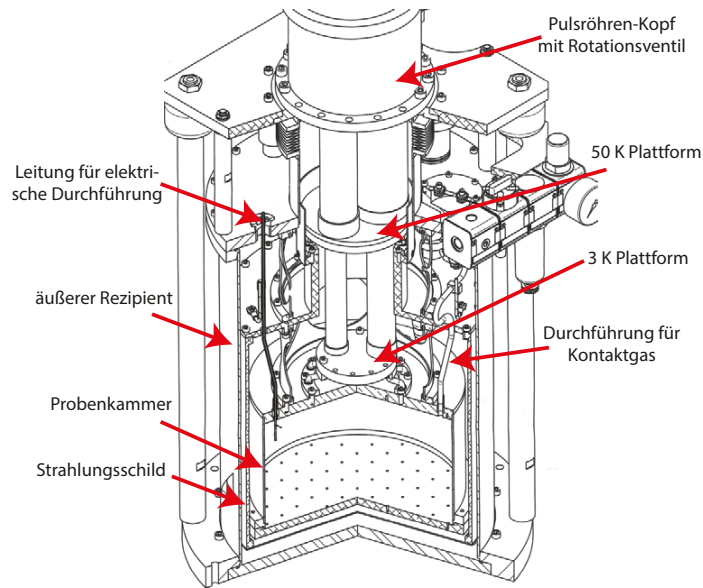


Abbildung A.1: a) Schematischer Schnitt durch die Längsachse des Kryostaten. Zu erkennen sind die drei Ebenen des Kryostaten (äußerer Rezipient, Strahlungsschild, Probenkammer), das zweistufige Kühlsystem (50 K- und 3 K Plattform) sowie die Durchführungen für das Kontaktgas (^4He) und die elektrischen Verbindungen in die Probenkammer zur Ansteuerung der Experimente. Am oberen Ende befindet sich der Pulsröhrenkopf mit dem zugehörigen Rotationsventil.

stellt die Probenkammer dar. Außerdem sind die Positionen der beiden Kühlplattformen (50 K- und 3 K-Plattform) eingezeichnet. In der zweiten Kühlstufe (3 K Plattform) wird lediglich die Deckenplatte der Probenkammer gekühlt. Ein von außen in die Probenkammer eingelassenes Kontaktgas (^4He) kühlt sich über den thermischen Kontakt mit der Deckenplatte ab und kühlt seinerseits alle in der Probenkammer verbauten Bauteile. Da der Kryostat für optische Experimente (Spektroskopie an Emittern in Festkörpersystemen, Realisierung fasergekoppelter Mikroresonatoren, ODMR an NV-Zentren) verwendet werden soll, wurden dem Standardkryostaten darüberhinaus einige für uns kundenspezifische Komponenten hinzugefügt. Diese umfassen:

- Eine vergrößerte Probenkammer.
- Zwei elektrische Durchführungen mit jeweils 27 Pins zur Ansteuerung der Piezo-Verschiebetische in der Probenkammer. Da der Verbindungsdraht gleichzeitig eine geringe Wärmeleitfähigkeit und einen geringen spezifischen elektrischen Widerstand ($\rho = 3,3 \Omega/m$) besitzen muss, wird Phosphor-Bronze Draht ($D=0,2\text{ mm}$) verwendet.
- Vier optische Zugänge zur Probenkammer, um den Anregungslaser von außen

Freistrahle auf die Probe zu fokussieren und Fluoreszenzlicht zu sammeln. Diese sind in einem 90 Grad Winkel um Rezipient, Strahlungsschild und Probenkammer angeordnet.

- Zwei SMA-Kabel, um Manipulation der Emitter durch Mikrowellen zu ermöglichen.
- Zwei Durchführungen für Ein-Moden-Fasern. Diese ermöglichen als Alternative zum optischen Zugang durch die Fenster an Rezipient, Strahlungsschild und Probenkammer einen direkt fasergekoppelten Zugang.
- Eine zusätzliche Entkopplung der Probenkammer durch Luftkissenpolster zur Vermeidung von Erschütterungen der optischen Aufbauten.

Der optische Zugang zum Inneren der Probenkammer erfolgt über drei Fenster, die sich an Rezipient, Strahlungsschild und Probenkammer befinden. Im Wellenlängenbereich von 400 nm bis 900 nm besitzen die Fenster an Rezipient und Strahlungsschild eine Transmission von etwa 91 % (vgl. Abbildung A.2, gemessen mit Photospektrometer). Auf diese Weise lässt sich die Transmission des inneren Fensters an der Probenkammer nicht vermessen, da diese nicht ausgebaut werden sollten, um die Dichtungen nicht zu beschädigen. Um Rückschlüsse auf die tatsächliche Emission der vermessenen Emitter im Kryostaten zu ermöglichen wurden ebenso die Transmissionen des zur Trennung von Anregungs und Emissionslicht verwendeten dichroitischen Spiegels und des Reinigungsfilters zur Beseitigung restlichen Laserlichtes vor der Detektionsfaser vermessen. Bei $\lambda=637$ nm liegt die Gesamttransmission bei etwa 65 %. Darüberhinaus lässt sich durch die Transmission der Fenster bei der Anregungswellenlänge $\lambda=532$ nm die Sättigungsleistung einzelner Emitter korrigieren. Abbildung A.3 zeigt jeweils ein Foto von geschlossenem und geöffnetem Kryostaten mit einer Auflistung aller wichtigen Komponenten.

Die Inbetriebnahme des Kryostaten erfolgt in mehreren Schritten:

- Schließen der Probenkammer inklusive Versiegelung mit Indium.
- Schließen des Kryostaten
- Den Rezipienten evakuieren und dabei den Druck in der Probenkammer beobachten. Fällt dieser, so besteht ein Leck zwischen Probenkammer und Rezipient und die Probenkammer muss neu mit Indium versiegelt werden.
- Liegt der Druck des Rezipienten bei $p < 10^{-4}$ mbar, kann die Probenkammer evakuiert werden.
- Nach der Evakuierung der Probenkammer etwa 200 mbar hochreines ^4He in die Probenkammer einlassen und die Kammer erneut evakuieren. Diesen Vorgang 3 mal wiederholen.
- Darauf achten, dass alle Anschlüsse (Temperaturcontroller, Frequenzinverter, Helium Vor- und Rücklauf) korrekt angeschlossen sind.

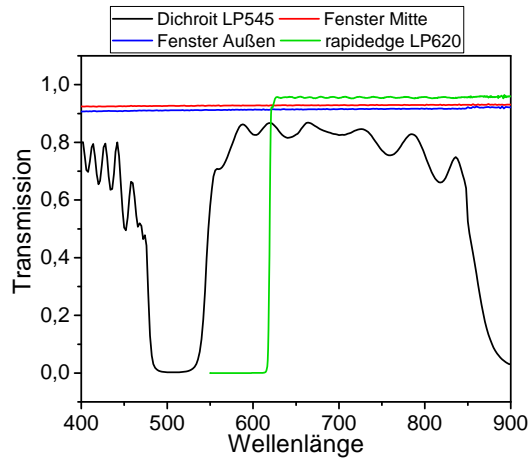


Abbildung A.2: Mit Photospektrometer gemessene wellenlängenabhängige Transmissionen der Fenster am Kryostaten. Gezeigt sind die Transmissionen der Fenster an Rezipient und Strahlungsschild. Beide besitzen eine Transmission von etwa 91 % über den gesamten Wellenlängenbereich. Außerdem wurden die Transmissionen des verwendeten dichroitischen Spiegels zur Trennung von Anregungs- und Emissionslicht und des Clean-Up Filters zur Beseitigung restlichen Laserlichts vor der Detektionsfaser vermessen. Die Gesamttransmission bei $\lambda=637$ nm beträgt etwa 65%.

- **WICHTIG:** Vor dem Abkühlvorgang die Attocube-Positionierer in der Probenkammer erden. Dazu am Controller die Positionierer auf die Einstellung GND setzen.
- Den Kompressor starten

Innerhalb des Kryostaten sind insgesamt 4 Temperatursensoren (Stufe 1, Strahlungsschild, Stufe 2, Probenraum) angebracht. Nach Einschalten benötigt er etwa 7 Stunden, um die Endtemperatur von ca. 3,1 K zu erreichen. Der Temperaturverlauf der Sensoren ist in Abbildung A.4a) dargestellt. Auffallend ist der rasche Temperaturabfall in der Probenkammer ab etwa 70 K. Ursache hierfür ist die Kondensation von verbleibendem Stickstoff nach Unterschreiten seiner Siedetemperatur an der Wand der Probenkammer, wodurch der Wärmeeindrang weiter reduziert wird. Bei etwa 3,1 K erreicht die Probenkammer die Endtemperatur. Diese unterliegt lediglich einer Schwankung von 2 mK während der restlichen Laufzeit (vgl. Abbildung A.4). Zwei Heizelemente an Probenraum und Strahlungsschild (Maximalleistung: 100 W) können genutzt werden, um die Temperatur in der Probenkammer zu regulieren und diese gegebenenfalls für temperaturabhängige Messungen hochzuheizen.

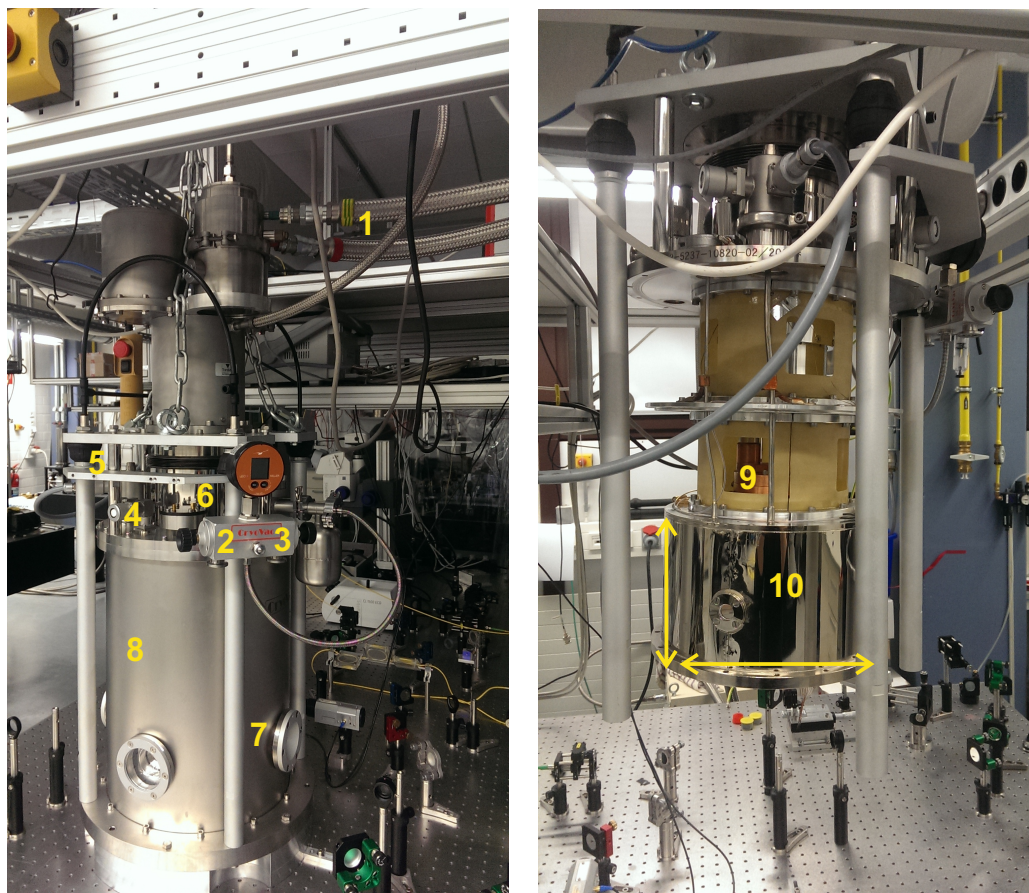


Abbildung A.3: *Links:* Geschlossener Kryostat; **1.** Helium Vor- und Rücklauf (Verbindung zu Kompressor); **2.** Anschluss für die Vakuumpumpe zum evakuieren des Probenraums; **3.** Anschluss zur Einführung des Kontaktgases in den Probenraum; **4.** Anschluss für die elektrische Durchführung in den Probenraum; **5.** Luftpolster zur Dämpfung des Probenraumes vor Vibrationen; **6.** Zwei SMA Anschlüsse und zwei Faserdurchführungen in den Probenraum; **7.** Vier optische Zugänge in den Kryostaten in 90 Grad Anordnung; **8.** Äußerer Kessel des Kryostaten, in dem das Isolationsvakuum vor dem Betrieb aufgebaut wird. *Rechts:* Geöffneter Kryostat; **9.** Thermische Verbindung des PulsröhrenKopfes zur Deckenplatte der Probenkammer. Die thermische Verbindung wird über einen Kupferblock hergestellt; **10.** Die Probenkammer innerhalb des Kryostaten mit vier optischen Zugängen in 90 Grad Anordnung. Die Probenplatte, auf der sich der optische Aufbau befindet, wird von unten an die Probenkammer geschraubt, wobei zur Dichtung ein Indium-Draht verwendet wird. (Nicht gezeigt: Anschluss der Vakuumpumpe an den Rezipienten.)

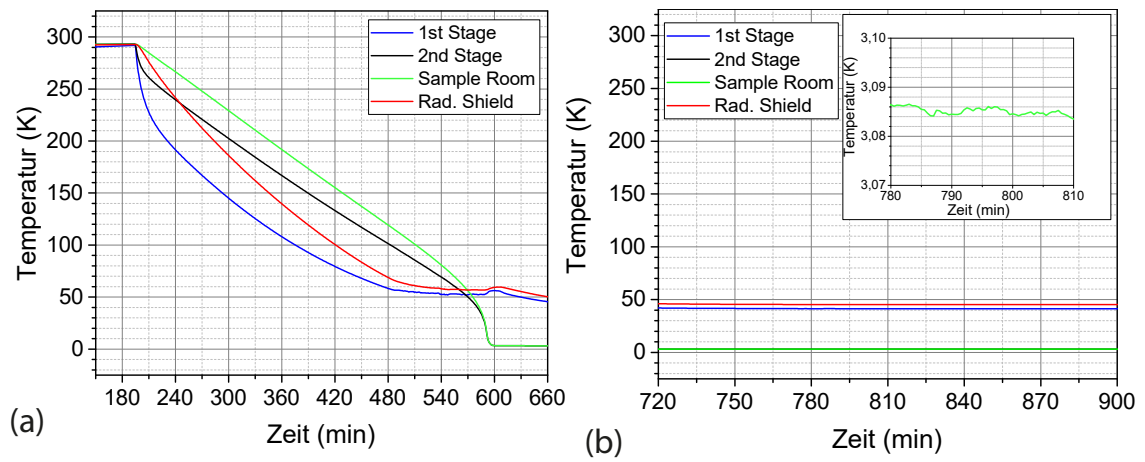


Abbildung A.4: a) Temperaturkurven der 4 Temperatursensoren innerhalb des Kryostaten während des Abkühlvorgangs. Nach etwa sieben Stunden ist die Endtemperatur in der Probenkammer ($T < 3,1$ K) erreicht. b) Messung der Stabilität der Temperatur in der Probenkammer. Die Temperatur schwankt nach Erreichen der Zieltemperatur nicht mehr als 2 mK

Anhang B

Intensitätskorrelation

Es ist zu zeigen:

$$g_{\text{misch}}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_2(t)I_1(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} + \frac{\langle I_1(t)I_2(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} = \text{konst.} \quad (\text{B.1})$$

Wir generieren unabhängig voneinander zwei Listen I_1 und I_2 mit Zufallszahlen im Intervall $[0,1]$. Danach addieren wir eine Gewichtung z bzw $1 - z$ ($z \in [0,1]$) zu jeder generierten Zufallszahlen und runden jede so erhaltene Zahl auf die nächste ganze Zahl. Steht die 1 für die Detektion eines Photons und 0 für ein leeres Bin, erhält man somit im Kontext des Experiments zwei unabhängige Emittter unterschiedlicher Oszillatorstärken, deren Gesamtintensität dennoch auf 1 normiert ist.

```
1 - clear all;
2 - close all;
3 - p=0.5;
4 - I1=round(rand(2E7,1)-0.5+(1-p));
5 - I2=round(rand(2E7,1)-0.5+p);
6 - tau=1:1:1000;
7 - K=0;
8 - for T=1:1E7
9 -     K=K+I1(T).*I2(T+tau)+I1(T+tau).*I2(T);
10 - end
11 - plot(tau,K);
12 - w(:,1)=tau;
13 - w(:,2)=K;
14 - dlmwrite('Korr.txt',w);
```

Abbildung B.1: Matlab Code zur Berechnung von Gleichung B.1

Wir zeigen numerisch, dass für ausreichend große Listen (d.h. ausreichend große Messzeit), obiger Ausdruck für beliebige Zeitverschiebung τ stets konstante Werte annimmt. Hierzu nutzen wir den in Abbildung B.1 gezeigten Matlab-Code. Abbildung B.2 zeigt das Resultat der Berechnung für gleichwertige Emittoren ($z=0,5$), eine Listenlänge von $T=10^7$ und Zeitverschiebungen bis $\tau=1000$. Es ist deutlich zu erkennen, dass das Integral unabhängig von der Zeitverschiebung stets konstante Werte annimmt. In diesem Fall beträgt er $4,999 \cdot 10^6$ ($1 \cdot 10^4$). Für $T \rightarrow \infty$ wird der Fehler immer vernachlässigbarer werden.

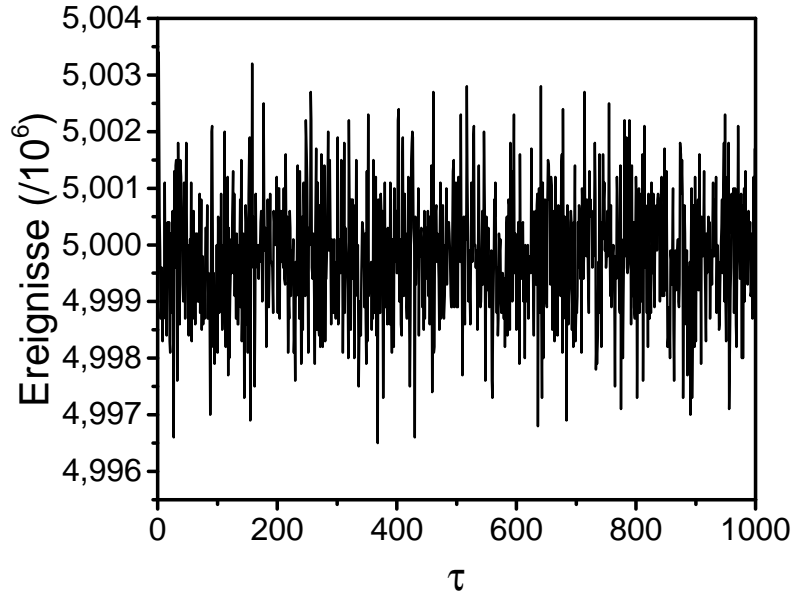


Abbildung B.2: Simulation von Gleichung B.1 gemäß des in Abbildung B.1 gezeigten Matlab Codes. Die Werte des Integrals liefern stets konstante Werte, deren Abweichungen vom Mittelwert mit wachsender Listengröße immer geringer werden.

Da es sich bei beiden Listen um diskrete Zufallsvariablen handelt und beide Terme symmetrisch sind, können wir obigen Erwartungswert ebenso explizit berechnen. Hierbei nehmen wir an, dass beide Emittoren unabhängig voneinander emittieren und nutzen aus, dass der Erwartungswert des Produktes zweier diskreter, unabhängiger Zufallsvariablen X und Y sich schreiben lässt als das Produkt der Erwartungswerte beider Zufallsvariablen; dh. $\langle XY \rangle = \langle X \rangle \cdot \langle Y \rangle$ [207]:

$$\begin{aligned}
g_{\text{misch}}^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle I_2(t)I_1(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} + \frac{\langle I_1(t)I_2(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} \\
&= 2 \cdot \frac{\langle I_1(t)I_2(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} \\
&= 2 \cdot \frac{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{ges}}(t) \rangle^2} \\
&= 2 \cdot \frac{\sum_{i=1}^n [(z \cdot 1) + (1-z) \cdot 0] \cdot \sum_{i=1}^n [(z \cdot 0) + (1-z) \cdot 1]}{n} \\
&= 2 \cdot \frac{\sum_{i=1}^n z \cdot \sum_{i=1}^n 1-z}{n^2} = 2 \frac{n^2 z(1-z)}{n^2} = 2z(1-z)
\end{aligned}$$

Anhang C

Emitter in Multilagen Material - Daten

Die Tabellen auf den folgenden Seiten fassen die Parameter der charakteristischen Emitter in Multilagen Flocken mit Mikrometer Ausdehnung zusammen, die in dieser Arbeit untersucht wurden. Hier sind λ_i die Zentralpositionen der vier typischen beobachteten Linien in nm, $\Delta\lambda_i$ deren entsprechenden Linienbreiten in nm. E_i bezeichnen die zugehörigen Zentralpositionen in Energieeinheiten und ΔE_i in meV, die energetischen Abstände zwischen Linie 1 und 2 (ΔE_1), Linie 1 und 3 (ΔE_2), Linie 1 und 4 (ΔE_3) und Linie 2 und 4 (ΔE_{24}) in meV. A_i sind die Flächen unter den jeweiligen Lorentz Anpassungen der 4 Linien des Spektrums. HR der Huang-Rhys-Faktor unter der Annahme, dass es sich lediglich bei Linie 1 um einen Null-Phononen-Übergang handelt und die restlichen drei Linien Phononenseitenbänder darstellen. I_{sat} und P_{sat} sind Sättigungszählrate und Sättigungsleistung der Emitter in Mcts/s und mW. Bei den orangenen Feldern liegen keine Daten vor.

	λ_1	λ_2	λ_3	λ_4	$\Delta\lambda_1$	$\Delta\lambda_2$	$\Delta\lambda_3$	$\Delta\lambda_4$	E1	E2	E3	E4	ΔE_1	ΔE_2	ΔE_3	ΔE_4	A1	A2	A3	A4	HR	l-sat	P-sat
1	686,96	695,17	754,33	764,03	6,00	26,42	7,65	29,50	1806,22	1784,89	1644,90	1624,02	21,33	161,32	182,20	160,87	x	14,51	2,34	9,71	x	x	x
2	611,09	612,20	x	x	1,23	16,16	x	x	2030,47	2026,79	x	x	3,68	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
3	610,40	612,00	x	x	1,70	17,00	x	x	2032,77	2027,45	x	x	5,31	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
4	697,57	697,57	829,00	x	2,96	49,07	2,12	x	1778,75	1778,75	1496,74	x	0,00	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
5	623,51	633,96	669,10	697,04	5,67	34,90	3,71	24,18	1990,02	1957,22	1854,43	1780,10	32,80	135,59	209,93	177,12	x	x	x	x	x	x	x
6	628,80	634,60	x	x	2,60	19,50	x	x	1973,28	1955,25	x	x	18,04	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
7	626,20	632,80	x	x	2,90	22,80	x	x	1981,48	1960,81	x	x	20,67	x	x	x	x	x	x	x	x	x	x
8	709,16	711,00	769,43	781,74	2,00	28,21	81,28	12,78	1749,68	1745,15	1612,62	1587,23	4,53	137,05	162,45	157,92	2,20	8,76	4,18	1,59	2,03	x	x
9	699,71	703,47	768,59	781,62	1,73	15,47	7,67	28,10	1773,31	1763,83	1614,38	1587,47	9,48	158,92	185,83	176,36	2,31	6,54	1,62	2,13	1,70	x	x
10	623,98	627,96	680,35	693,15	1,72	13,36	6,74	12,54	1988,53	1975,92	1823,77	1790,09	12,60	164,76	198,44	185,83	10,49	17,54	11,01	11,56	1,57	2,3	1,00
11	638,95	640,95	697,54	710,92	2,36	6,69	11,87	2,67	1941,94	1935,88	1778,82	1745,34	6,06	163,11	196,59	190,53	7,32	6,19	4,19	4,39	1,10	1,6	0,70
12	627,13	632,93	682,73	691,66	2,66	15,80	6,23	40,22	1978,54	1960,41	1817,41	1793,95	18,13	161,13	184,59	166,46	3,30	8,91	1,86	11,70	2,06	2	9,20
13	672,70	673,62	732,24	736,12	1,31	2,29	1,30	19,36	1844,51	1841,99	1694,53	1685,59	2,52	149,98	158,91	156,39	3,76	2,88	1,46	0,15	0,79	x	x
14	665,20	x	744,60	746,70	8,30	x	1,25	18,00	1865,30	x	1666,40	1661,71	x	198,91	203,59	x	17,53	x	1,70	7,00	x	3,6	5,70
15	660,30	664,55	x	x	3,78	19,31	x	x	1879,15	1867,13	x	x	12,02	x	x	x	x	x	x	x	x	0,6	1,00
16	651,49	659,70	713,76	727,90	2,58	26,42	9,25	9,53	1904,56	1880,85	1738,40	1704,63	23,70	166,16	199,93	176,23	3,24	7,83	1,35	1,28	1,44	2,1	5,30
18	639,86	652,76	699,60	715,00	4,77	30,32	x	x	1939,17	1900,85	1773,58	1735,38	38,32	165,59	203,79	165,47	x	x	x	x	x	x	x
19	642,84	645,26	701,87	714,80	1,60	20,74	10,44	9,25	1930,18	1922,95	1767,85	1735,87	7,24	162,34	194,31	187,08	3,73	13,31	4,27	3,29	1,89	3,5	0,45
20	651,50	659,70	710,20	725,70	3,60	19,00	18,40	9,50	1904,53	1880,85	1747,11	1709,80	23,67	157,41	194,73	171,06	8,22	9,24	3,11	1,68	1,00	3,1	2,40
23	641,90	645,52	699,73	714,44	3,24	17,03	11,12	10,16	1933,01	1922,17	1773,26	1736,74	10,84	159,76	196,27	185,43	8,79	9,77	3,32	1,94	1,00	x	x
24	704,10	708,70	773,00	777,00	1,63	26,13	5,00	5,00	1762,25	1750,81	1605,17	1596,91	11,44	157,08	165,34	153,90	x	x	x	x	x	2,2	6,10
25	646,96	647,36	683,60	704,92	1,87	24,25	12,34	29,07	1917,89	1916,71	1815,10	1760,20	1,19	102,80	157,69	156,51	6,01	12,38	5,37	6,76	1,62	2,1	2,70
26	634,18	636,78	681,20	690,38	2,67	16,95	2,30	22,13	1956,54	1948,55	1821,49	1797,27	7,99	135,05	159,27	151,28	6,36	12,45	4,92	7,32	1,59	0,5	0,30
27	666,70	668,00	729,20	735,50	1,80	13,20	5,40	5,50	1861,11	1857,49	1701,59	1687,02	3,62	159,52	174,09	170,47	x	x	x	x	x	1,8	0,80

Anhang D

Publikationen

Publikationen in Journalen

- R. Albrecht, A. Bommer, C. Deutsch, J. Reichel, and C. Becher, „Coupling of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond to a Fiber-Based Microcavity”, *Phys. Rev. Lett.* 110, 243602 (2013).
- R. Albrecht, A. Bommer, C. Pauly, F. Mücklich, A.W. Schell, P. Engel, T. Schröder, O. Benson, J. Reichel, and C. Becher, „Narrow-band single photon emission at room temperature based on a single Nitrogen-vacancy center coupled to an all-fiber-cavity“, *Appl. Phys. Lett.* 105, 073113 (2014).
- J. Benedikter, H. Kaupp, T. Hümmer, Y. Liang, A. Bommer, C. Becher, A. Krueger, J.M. Smith, T. W. Hänsch, and D. Hunger, „A cavity-enhanced single photon source based on the silicon vacancy center in diamond“, *Phys. Rev. Appl.* 7, 024031 (2017).
- T. Herzog, M. Sartison, S. Kolatschek, S. Hepp, A. Bommer, C. Pauly, F. Mücklich, C. Becher, M. Jetter, S. Portalupi, and P. Michler, „Pure single-photon emission from InGaAs QDs in a tunable fiber-based external mirror microcavity“, *Quantum Sci. Technol.* 3, 034009 (2018).
- S. Lindner, A. Bommer, A. Muzha, A. Krueger, L. Gines, S. Mandal, O. Williams, E. Londero, A. Gali, C. Becher, „Strongly inhomogeneous distribution of spectral properties of silicon-vacancy color centers in nanodiamonds“, *arXiv:1807.03842* (2018)

Konferenzbeiträge

- **DPG Frühjahrstagung 2013 - Hannover, Deutschland:**
A.Bommer, R.Albrecht, C.Deutsch, J.Reichel and C.Becher, „Realization of a fiber based microcavity for coupling a single N-V center in diamond“
- **CLEO Europe EQEC 2013 - München, Deutschland:**
?R.Albrecht, A.Bommer, C.Deutsch, J.Reichel and C.Becher, „Coupling of a single N-V center in diamond to a ber-based microcavity“, in CLEO/Europe and EQEC 2013 Conference Digest, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2013), paper IH3.5
- **DPG Frühjahrstagung 2014 - Berlin, Deutschland:**
A.Bommer, R.Albrecht, C.Deutsch, J.Reichel and C.Becher, „Realization of a fiber based microcavity for coupling color centers in diamond“
- **MRS Spring Meeting, 2014 - San Francisco, Californien:**
C.Becher, A.Bommer, R.Albrecht, L.Kipfstuhl, J.Riedrich-Möller, „Coupling of single color centers in bulk and nanodiamond to optical micro-cavities“
- **Hasselt Diamond Workshop 2015 - SBDD XX, Hasselt, Belgien:**
A.Bommer, R.Albrecht, R.Falkowski, S.Lindner, P.Dolan, A.Trichet, J.Smith, A.W.Schell, O.Benson, S.Mandal, L.Gines, O.Williams, A.Muzha, A.Krueger, C.Becher „Coupling of color centers in nanodiamonds to open access micro-cavities“
- **DPG Frühjahrstagung 2015 - Heidelberg, Deutschland:**
A.Bommer, R.Albrecht, R.Falkowski, S.Lindner, P.Dolan, A.Trichet, J.Smith, A.W.Schell, O.Benson, S.Mandal, L.Gines, O.Williams, A.Muzha, A.Krueger, C.Becher, „Coupling of color centers in nanodiamonds to open access micro-cavities“
- **SPSS Workshop 2016 - Oxford, England:**
A.Bommer, R.Albrecht, M.Schmidt, C.Becher, „Coupling of color centers in diamond and hexagonal boron nitride to tunable fiber based micro-cavities“
- **SPSS Workshop 2017 - Troyes, Frankreich:**
A.Bommer, A.Scherrmann, H.Moon, G.Grosso, D.Englund, C. Becher, „Coupling of single defects in hexagonal boron nitride to fiber based micro cavities“

Literaturverzeichnis

- [1] M. Planck. Faksimilie aus den Verhandlungen der deutschen physikalischen Gesellschaft 2 (1900) S. 237: Zur Theorie des Gesetzes der Energieverteilung im Normalspectrum; von M. Planck. *Physikalische Blätter*, **4** (4), 146–151, 1900.
- [2] G. Lewis. The Conservation of Photons. *Nature*, **118**, 874, 1926.
- [3] A. Einstein. Über einen die Erzeugung und Verandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Annalen der Physik*, **17**, 132 (1905), 1905.
- [4] J. C. Maxwell. VIII. A dynamical theory of the electromagnetic field. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, **155**, 459–512, 1865.
- [5] R. J. Glauber. Photon Correlations. *Phys. Rev. Lett.*, **10**, 84–86, 1963.
- [6] *Optical Coherence and Photon Statistics*, Kapitel 2, S. 23–182. Wiley-Blackwell, Glauber2007.
- [7] H. Brown und R. Twiss. Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light. *Nature*, **177** (4497), 27–29, 1956.
- [8] J. F. Clauser. Experimental distinction between the quantum and classical field-theoretic predictions for the photoelectric effect. *Phys. Rev. D*, **9**, 853–860, 1974.
- [9] H. J. Kimble, M. Dagenais, und L. Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, **39**, 691–695, 1977.
- [10] E. Schrödinger. Are There Quantum Jumps ? *British Journal for the Philosophy of Science*, **3** (11), 233–242, 1952.
- [11] B. Lounis und M. Orrit. Single-photon sources. *Rep. Prog. Phys.*, **68** (5), 1129, 2005.
- [12] C. Brunel, B. Lounis, P. Tamarat, und M. Orrit. Triggered Source of Single Photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, **83** (14), 2722–2725, 1999.

- [13] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, und A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, **290**, 2282–2286, 2000.
- [14] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, und Y. Yamamoto. Triggered single photons from a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 1502–1505, 2001.
- [15] B. Keller, M. and Lange, K. Hayasaka, W. Lange, und H. Walther. Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system. *Nature*, **431** (7012), 1075–1078, 2004.
- [16] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, und H. Weinfurter. Stable Solid-State Source of Single Photons. *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2), 290–293, 2000.
- [17] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, und P. Grangier. Single-photon generation by pulsed excitation of a single dipole. *Phys. Rev. A*, **62** (6), 063817, 2000.
- [18] T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, M. Domhan, F. Jelezko, und J. Wrachtrup. Stable single-photon source in the near infrared. *New J. Phys.*, **6** (1), 98, 2004.
- [19] N. B. Manson, J. P. Harrison, und M. J. Sellars. Nitrogen-vacancy center in diamond: Model of the electronic structure and associated dynamics. *Phys. Rev. B*, **74**, 104303, 2006.
- [20] E. Neu, D. Steinmetz, J. Riedrich-Möller, S. Gsell, M. Fischer, M. Schreck, und C. Becher. Single photon emission from silicon-vacancy colour centres in chemical vapour deposition nano-diamonds on iridium. *New J. Phys.*, **13** (2), 025012, 2011.
- [21] P. Kumar, P. Kwiat, A. Migdall, S. W. Nam, J. Vuckovic, und F. N. Wong. Photonic Technologies for Quantum Information Processing. *Quantum Information Processing*, **3** (1), 215–231, 2004.
- [22] H. J. Kimble. The quantum internet. *Nature*, **453**, 1023, 2008.
- [23] M. Atatüre, D. Englund, N. Vamivakas, S.-Y. Lee, und J. Wrachtrup. Material platforms for spin-based photonic quantum technologies. *Nature Reviews Materials*, **3** (5), 38–51, 2018.
- [24] E. Knill, R. Laflamme, und G. J. Milburn. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature*, **409**, 46, 2001.
- [25] P. Kok. Photonic quantum information processing. *Contemporary Physics*, **57** (4), 526–544, 2016.
- [26] F. Flamini, N. Spagnolo, und F. Sciarrino. Photonic quantum information processing: a review. *arXiv:1803.02790*, 2018.

- [27] J. I. Cirac und P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4091–4094, 1995.
- [28] F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G. P. T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C. F. Roos, J. Eschner, und R. Blatt. Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate. *Nature*, **422**, 408, 2003.
- [29] J. I. Cirac, P. Zoller, H. J. Kimble, und H. Mabuchi. Quantum State Transfer and Entanglement Distribution among Distant Nodes in a Quantum Network. *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 3221–3224, 1997.
- [30] J. I. Cirac, A. K. Ekert, S. F. Huelga, und C. Macchiavello. Distributed quantum computation over noisy channels. *Phys. Rev. A*, **59**, 4249–4254, 1999.
- [31] D. L. Moehring, P. Maunz, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, L.-M. Duan, und C. Monroe. Entanglement of single-atom quantum bits at a distance. *Nature*, **449**, 68, 2007.
- [32] J. N. Becker und C. Becher. Coherence Properties and Quantum Control of Silicon Vacancy Color Centers in Diamond. *physica status solidi (a)*, **214** (11), 1700586.
- [33] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, und L. C. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Physics Reports*, **528** (1), 1 – 45, 2013. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond.
- [34] E. Togan, Y. Chu, A. S. Trifonov, L. Jiang, J. Maze, L. Childress, M. V. G. Dutt, A. S. Sorensen, P. R. Hemmer, A. S. Zibrov, und M. D. Lukin. Quantum entanglement between an optical photon and a solid-state spin qubit. *Nature*, **466** (7307), 730–734, 2010.
- [35] H. Bernien, B. Hensen, W. Pfaff, G. Koolstra, M. S. Blok, L. Robledo, T. H. Taminiau, M. Markham, D. J. Twitchen, L. Childress, und R. Hanson. Heralded entanglement between solid-state qubits separated by three metres. *Nature*, **497** (7447), 86–90, 2013.
- [36] B. Hensen, H. Bernien, A. E. Dreau, A. Reiserer, N. Kalb, M. S. Blok, J. Ruitenberg, R. F. L. Vermeulen, R. N. Schouten, C. Abellan, W. Amaya, V. Pruneri, M. W. Mitchell, M. Markham, D. J. Twitchen, D. Elkouss, S. Wehner, T. H. Taminiau, und R. Hanson. Loophole-free Bell inequality violation using electron spins separated by 1.3 kilometres. *Nature*, **526** (7575), 682–686, 2015.
- [37] P. Siyushev, F. Kaiser, V. Jacques, I. Gerhardt, S. Bischof, H. Fedder, J. Dodson, M. Markham, D. Twitchen, F. Jelezko, und J. Wrachtrup. Monolithic diamond optics for single photon detection. *Appl. Phys. Lett.*, **97** (24), 241902, 2010.
- [38] T. Schröder, F. Gädeke, M. J. Banholzer, und O. Benson. Ultra-bright and efficient single photon generation based on N-V centres in nanodiamonds on a solid immersion lens. *New J. Phys.*, **13** (arXiv:1011.1822), 055017, 2010.

- [39] L. Marseglia, J. P. Hadden, A. C. Stanley-Clarke, J. P. Harrison, B. Patton, Y.-L. D. Ho, B. Naydenov, F. Jelezko, J. Meijer, P. R. Dolan, J. M. Smith, J. G. Rarity, und J. L. O'Brien. Nanofabricated solid immersion lenses registered to single emitters in diamond. *Appl. Phys. Lett.*, **98** (13), 133107, 2011.
- [40] C. Hepp, T. Müller, V. Waselowski, J. N. Becker, B. Pingault, H. Sternschulte, D. Steinmüller-Nethl, A. Gali, J. R. Maze, M. Atatüre, und C. Becher. Electronic Structure of the Silicon Vacancy Color Center in Diamond. *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 036405, 2014.
- [41] A. Bommer. Erhöhung der Sammeleffizienz einzelner Photonen mit Hilfe von Festkörper-Immersionslinsen. *Bachelor-Arbeit (Universität des Saarlandes)*, 2011.
- [42] S. A. Momenzadeh, R. J. Stöhr, F. F. de Oliveira, A. Brunner, A. Denisenko, S. Yang, F. Reinhard, und J. Wrachtrup. Nanoengineered Diamond Waveguide as a Robust Bright Platform for Nanomagnetometry Using Shallow Nitrogen Vacancy Centers. *Nano Lett.*, **15** (1), 165–169, 2015.
- [43] T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer, und M. Loncar. A diamond nanowire single-photon source. *Nature Nanotechnology*, **5**, 195, 2010.
- [44] L. Marseglia, K. Saha, A. Ajoy, T. Schröder, D. Englund, F. Jelezko, R. Walsworth, J. L. Pacheco, D. L. Perry, E. S. Bielejec, und P. Cappellaro. Bright nanowire single photon source based on SiV centers in diamond. *Opt. Express*, **26** (1), 80–89, 2018.
- [45] R. Albrecht, A. Bommer, C. Deutsch, J. Reichel, und C. Becher. Coupling of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond to a Fiber-Based Microcavity. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 243602, 2013.
- [46] R. Albrecht, A. Bommer, C. Pauly, F. Mücklich, A. W. Schell, P. Engel, T. Schröder, O. Benson, J. Reichel, und C. Becher. Narrow-band single photon emission at room temperature based on a single nitrogen-vacancy center coupled to an all-fiber-cavity. *Applied Physics Letters*, **105** (7), 073113, 2014.
- [47] A. Auffeves, J.-M. Gérard, und J.-P. Poizat. Pure emitter dephasing: A resource for advanced solid-state single-photon sources. *Phys. Rev. A*, **79**, 053838, 2009.
- [48] A. Auffeves, D. Gerace, J.-M. Gérard, M. F. m. c. Santos, L. C. Andreani, und J.-P. Poizat. Controlling the dynamics of a coupled atom-cavity system by pure dephasing. *Phys. Rev. B*, **81**, 245419, 2010.
- [49] P. R. Dolan, S. Adekanye, A. A. P. Trichet, S. Johnson, L. C. Flatten, Y. C. Chen, L. Weng, D. Hunger, H.-C. Chang, S. Castelletto, und J. M. Smith. Robust, tunable, and high purity triggered single photon source at room temperature

- using a nitrogen-vacancy defect in diamond in an open microcavity. *Opt. Express*, **26** (6), 7056–7065, 2018.
- [50] K.-M. C. Fu, C. Santori, P. E. Barclay, L. J. Rogers, N. B. Manson, und R. G. Beausoleil. Temperature Dependence of the Polarization and Linewidth of the Optical Transitions of Single Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond. In *Frontiers in Optics 2009/Laser Science XXV/Fall 2009 OSA Optics & Photonics Technical Digest*, S. LSTuD3. Optical Society of America, 2009.
- [51] A. Batalov, V. Jacques, F. Kaiser, P. Siyushev, P. Neumann, L. J. Rogers, R. L. McMurtrie, N. B. Manson, F. Jelezko, und J. Wrachtrup. Low Temperature Studies of the Excited-State Structure of Negatively Charged Nitrogen-Vacancy Color Centers in Diamond. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 195506, 2009.
- [52] D. Riedel, I. Söllner, B. J. Shields, S. Starosielec, P. Appel, E. Neu, P. Maletinsky, und R. J. Warburton. Deterministic Enhancement of Coherent Photon Generation from a Nitrogen-Vacancy Center in Ultrapure Diamond. *Phys. Rev. X*, **7**, 031040, 2017.
- [53] S. van Dam, M. Ruf, und R. Hanson. Optimal design of diamond-air microcavities for quantum networks using an analytical approach. *arXiv:1806.11474*, 2018.
- [54] T. Grange, G. Hornecker, D. Hunger, J.-P. Poizat, J.-M. Gérard, P. Senellart, und A. Auffèves. Cavity-Funneled Generation of Indistinguishable Single Photons from Strongly Dissipative Quantum Emitters. *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 193601, 2015.
- [55] S. Wein, N. Lauk, R. Ghobadi, und C. Simon. Feasibility of efficient room-temperature solid-state sources of indistinguishable single photons using ultrasmall mode volume cavities. *Phys. Rev. B*, **97**, 205418, 2018.
- [56] S. Aaronson und A. Arkhipov. The Computational Complexity of Linear Optics. *Theory of Computing*, **9** (4), 143–252, 2013.
- [57] B. T. Gard, K. R. Motes, J. P. Olson, P. P. Rohde, und J. P. Dowling. *An Introduction to Boson-Sampling*, Kapitel Chapter 8, S. 167–192.
- [58] A. Sipahigil, K. D. Jahnke, L. J. Rogers, T. Teraji, J. Isoya, A. S. Zibrov, F. Jelezko, und M. D. Lukin. Indistinguishable Photons from Separated Silicon-Vacancy Centers in Diamond. *Phys. Rev. Lett.*, **113**, 113602, 2014.
- [59] J. N. Becker, J. Görlitz, C. Arend, M. Markham, und C. Becher. Ultrafast all-optical coherent control of single silicon vacancy colour centres in diamond. *Nature Communications*, **7**, 13512, 2016.
- [60] B. Pingault, D.-D. Jarausch, C. Hepp, L. Klintberg, J. N. Becker, M. Markham, C. Becher, und M. Atatüre. Coherent control of the silicon-vacancy spin in diamond. *Nature Communications*, **8**, 15579, 2017.

- [61] J. N. Becker, B. Pingault, D. Groß, M. Gündoğan, N. Kukharchyk, M. Markham, A. Edmonds, M. Atatüre, P. Bushev, und C. Becher. All-Optical Control of the Silicon-Vacancy Spin in Diamond at Millikelvin Temperatures. *Phys. Rev. Lett.*, **120**, 053603, 2018.
- [62] D. D. Sukachev, A. Sipahigil, C. T. Nguyen, M. K. Bhaskar, R. E. Evans, F. Jelezko, und M. D. Lukin. Silicon-Vacancy Spin Qubit in Diamond: A Quantum Memory Exceeding 10 ms with Single-Shot State Readout. *Phys. Rev. Lett.*, **119**, 223602, 2017.
- [63] J. Benedikter, H. Kaupp, T. Hümmer, Y. Liang, A. Bommer, C. Becher, A. Krueger, J. M. Smith, T. W. Hänsch, und D. Hunger. Cavity-Enhanced Single-Photon Source Based on the Silicon-Vacancy Center in Diamond. *Phys. Rev. Applied*, **7**, 024031, 2017.
- [64] T. T. Tran, K. Bray, M. J. Ford, M. Toth, und I. Aharonovich. Quantum emission from hexagonal boron nitride monolayers. *Nat Nano*, **11** (1), 37–41, 2016.
- [65] T. T. Tran, C. Elbadawi, D. Totonjian, C. J. Lobo, G. Grosso, H. Moon, D. R. Englund, M. J. Ford, I. Aharonovich, und M. Toth. Robust Multicolor Single Photon Emission from Point Defects in Hexagonal Boron Nitride. *ACS Nano*, **10** (8), 7331–7338, 2016. PMID: 27399936.
- [66] T. T. Tran, C. Zachreson, A. M. Berhane, K. Bray, R. G. Sandstrom, L. H. Li, T. Taniguchi, K. Watanabe, I. Aharonovich, und M. Toth. Quantum Emission from Defects in Single-Crystalline Hexagonal Boron Nitride. *Phys. Rev. Applied*, **5**, 034005, 2016.
- [67] L. J. Martínez, T. Pelini, V. Waselowski, J. R. Maze, B. Gil, G. Cassaboïs, und V. Jacques. Efficient single photon emission from a high-purity hexagonal boron nitride crystal. *Phys. Rev. B*, **94**, 121405, 2016.
- [68] A. W. Schell, T. T. Tran, H. Takashima, S. Takeuchi, und I. Aharonovich. Non-linear excitation of quantum emitters in hexagonal boron nitride multilayers. *APL Photonics*, **1** (9), 091302, 2016.
- [69] S. Choi, T. T. Tran, C. Elbadawi, C. Lobo, X. Wang, S. Juodkazis, G. Seniutinas, M. Toth, und I. Aharonovich. Engineering and Localization of Quantum Emitters in Large Hexagonal Boron Nitride Layers. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **8** (43), 29642–29648, 2016.
- [70] N. R. Jungwirth, B. Calderon, Y. Ji, M. G. Spencer, M. E. Flatté, und G. D. Fuchs. Temperature Dependence of Wavelength Selectable Zero-Phonon Emission from Single Defects in Hexagonal Boron Nitride. *Nano Letters*, **16** (10), 6052–6057, 2016. PMID: 27580074.

- [71] N. Chejanovsky, M. Rezai, F. Paolucci, Y. Kim, T. Rendler, W. Rouabeh, F. Fávaro de Oliveira, P. Herlinger, A. Denisenko, S. Yang, I. Gerhardt, A. Finkler, J. H. Smet, und J. Wrachtrup. Structural Attributes and Photodynamics of Visible Spectrum Quantum Emitters in Hexagonal Boron Nitride. *Nano Letters*, **16** (11), 7037–7045, 2016. PMID: 27700104.
- [72] A. L. Exarhos, D. A. Hopper, R. R. Grote, A. Alkauskas, und L. C. Bassett. Optical Signatures of Quantum Emitters in Suspended Hexagonal Boron Nitride. *ACS Nano*, **11** (3), 3328–3336, 2017. PMID: 28267917.
- [73] M. Koperski, K. Nogajewski, A. Arora, V. Cherkez, P. Mallet, J.-Y. Veuillen, J. Marcus, P. Kossacki, und M. Potemski. Single photon emitters in exfoliated WSe₂ structures. *Nature Nanotechnology*, **10**, 503, 2015.
- [74] A. Srivastava, M. Sidler, A. V. Allain, D. S. Lembke, A. Kis, und A. Imamoglu. Optically active quantum dots in monolayer WSe₂. *Nature Nanotechnology*, **10**, 491, 2015.
- [75] V. Perebeinos. Two dimensions and one photon. *Nature Nanotechnology*, **10**, 485, 2015.
- [76] C. Chakraborty, L. Kinnischtzke, K. M. Goodfellow, R. Beams, und A. N. Vamivakas. Voltage-controlled quantum light from an atomically thin semiconductor. *Nature Nanotechnology*, **10**, 507, 2015.
- [77] C. Palacios-Berraquero, M. Barbone, D. M. Kara, X. Chen, I. Goykhman, D. Yoon, A. K. Ott, J. Beitner, K. Watanabe, T. Taniguchi, A. C. Ferrari, und M. Atatüre. Atomically thin quantum light-emitting diodes. *Nature Communications*, **7**, 12978, 2016.
- [78] P. Tonndorf, R. Schmidt, R. Schneider, J. Kern, M. Buscema, G. A. Steele, A. Castellanos-Gomez, H. S. J. van der Zant, S. M. de Vasconcellos, und R. Bratschkitsch. Single-photon emission from localized excitons in an atomically thin semiconductor. *Optica*, **2** (4), 347–352, 2015.
- [79] I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, A. Stacey, J. McCallum, A. D. Greentree, und S. Prawer. Two-Level Ultrabright Single Photon Emission from Diamond Nanocrystals. *Nano Letters*, **9** (9), 3191–3195, 2009. PMID: 19670845.
- [80] S. A. Tawfik, S. Ali, M. Fronzi, M. Kianinia, T. T. Tran, C. Stampfl, i. aharonovich, M. Toth, und M. Ford. First principles investigation of quantum emission from hBN defects. *Nanoscale*, S. –, 2017.
- [81] M. Abdi, J.-P. Chou, A. Gali, und M. B. Plenio. Color Centers in Hexagonal Boron Nitride Monolayers: A Group Theory and Ab Initio Analysis. *ACS Photonics*, **5** (5), 1967–1976, 2018.

- [82] A. Sajid, J. R. Reimers, und M. J. Ford. Defect states in hexagonal boron nitride: Assignments of observed properties and prediction of properties relevant to quantum computation. *Phys. Rev. B*, **97**, 064101, 2018.
- [83] M. H. Khan, Z. Huang, F. Xiao, G. Casillas, Z. Chen, P. J. Molino, und H. K. Liu. Synthesis of Large and Few Atomic Layers of Hexagonal Boron Nitride on Melted Copper. *Scientific Reports*, **5**, 7743, 2015.
- [84] Y. Shi, C. Hamsen, X. Jia, K. K. Kim, A. Reina, M. Hofmann, A. L. Hsu, K. Zhang, H. Li, Z.-Y. Juang, M. S. Dresselhaus, L.-J. Li, und J. Kong. Synthesis of Few-Layer Hexagonal Boron Nitride Thin Film by Chemical Vapor Deposition. *Nano Letters*, **10** (10), 4134–4139, 2010. PMID: 20812716.
- [85] J.-H. Park, J. C. Park, S. J. Yun, H. Kim, D. H. Luong, S. M. Kim, S. H. Choi, W. Yang, J. Kong, K. K. Kim, und Y. H. Lee. Large-Area Monolayer Hexagonal Boron Nitride on Pt Foil. *ACS Nano*, **8** (8), 8520–8528, 2014. PMID: 25094030.
- [86] A. Ismach, H. Chou, D. A. Ferrer, Y. Wu, S. McDonnell, H. C. Floresca, A. Co-vacevich, C. Pope, R. Piner, M. J. Kim, R. M. Wallace, L. Colombo, und R. S. Ruoff. Toward the Controlled Synthesis of Hexagonal Boron Nitride Films. *ACS Nano*, **6** (7), 6378–6385, 2012. PMID: 22702240.
- [87] K. K. Kim, A. Hsu, X. Jia, S. M. Kim, Y. Shi, M. Hofmann, D. Nezich, J. F. Rodriguez-Nieva, M. Dresselhaus, T. Palacios, und J. Kong. Synthesis of Monolayer Hexagonal Boron Nitride on Cu Foil Using Chemical Vapor Deposition. *Nano Letters*, **12** (1), 161–166, 2012. PMID: 22111957.
- [88] D. Pacilé, J. C. Meyer, . . Girit, und A. Zettl. The two-dimensional phase of boron nitride: Few-atomic-layer sheets and suspended membranes. *Applied Physics Letters*, **92** (13), 133107, 2008.
- [89] J. N. Coleman, M. Lotya, A. O'Neill, S. D. Bergin, P. J. King, U. Khan, K. Young, A. Gaucher, S. De, R. J. Smith, I. V. Shvets, S. K. Arora, G. Stanton, H.-Y. Kim, K. Lee, G. T. Kim, G. S. Duesberg, T. Hallam, J. J. Boland, J. J. Wang, J. F. Donegan, J. C. Grunlan, G. Moriarty, A. Shmeliov, R. J. Nicholls, J. M. Perkins, E. M. Grievson, K. Theuwissen, D. W. McComb, P. D. Nellist, und V. Nicolosi. Two-Dimensional Nanosheets Produced by Liquid Exfoliation of Layered Materials. *Science*, **331** (6017), 568–571, 2011.
- [90] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov, und A. K. Geim. Two-dimensional atomic crystals. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **102** (30), 10451–10453, 2005.
- [91] S. Nakamura, T. Mukai, und M. Senoh. Candela-class high-brightness InGaN/Al-GaN double-heterostructure blue-light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, **64** (13), 1687–1689, 1994.

- [92] N. Shuji. Die Erfindung effizienter blauer InGaN-Leuchtdioden: eine Hintergrundgeschichte (Nobel-Aufsatz). *Angewandte Chemie*, **127** (27), 7880–7899.
- [93] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, und A. A. Firsov. Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science*, **306** (5696), 666–669, 2004.
- [94] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Morozov, und A. K. Geim. Two-dimensional atomic crystals. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **102** (30), 10451–10453, 2005.
- [95] A. K. Geim und K. S. Novoselov. The rise of graphene. *Nature Materials*, **6**, 183, 2007.
- [96] G. Giovannetti, P. A. Khomyakov, G. Brocks, P. J. Kelly, und J. van den Brink. Substrate-induced band gap in graphene on hexagonal boron nitride: Ab initio density functional calculations. *Phys. Rev. B*, **76**, 073103, 2007.
- [97] B. Hunt, J. D. Sanchez-Yamagishi, A. F. Young, M. Yankowitz, B. J. LeRoy, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Moon, M. Koshino, P. Jarillo-Herrero, und R. C. Ashoori. Massive Dirac Fermions and Hofstadter Butterfly in a van der Waals Heterostructure. *Science*, **340** (6139), 1427–1430, 2013.
- [98] W. H. Balmain. Bemerkungen über die Bildung von Verbindungen des Bors und Siliciums mit Stickstoff und gewissen Metallen. *Journal für Praktische Chemie*, **27** (1), 422–430, 1842.
- [99] A. Pakdel, Y. Bando, und D. Golberg. Nano boron nitride flatland. *Chem. Soc. Rev.*, **43**, 934–959, 2014.
- [100] E. Tegeler, N. Kosuch, G. Wiech, und A. Faessler. On the electronic structure of hexagonal boron nitride. *physica status solidi (b)*, **91** (1), 223–231, 1979.
- [101] A. Catellani, M. Posternak, A. Baldereschi, und A. J. Freeman. Bulk and surface electronic structure of hexagonal boron nitride. *Phys. Rev. B*, **36**, 6105–6111, 1987.
- [102] V. Solozhenko, A. Lazarenko, J.-P. Petitet, und A. Kanaev. Bandgap energy of graphite-like hexagonal boron nitride. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **62** (7), 1331 – 1334, 2001.
- [103] C. A. Taylor, S. W. Brown, V. Subramaniam, S. Kidner, S. C. Rand, und R. Clarke. Observation of near-band-gap luminescence from boron nitride films. *Applied Physics Letters*, **65** (10), 1251–1253, 1994.
- [104] Watanabe. Direct-bandgap properties and evidence for UV lasing of hBN single crystal. *Nature Materials*, 2004.

- [105] P. . B. G.Cassabois. Hexagonal Boron Nitride is an indirect bandgap semiconductor. *Nature Photonics*, **10**, 262-266, 2016.
- [106] L. Museur, D. Anglos, J.-P. Petitet, J.-P. Michel, und A. V. Kanaev. Photoluminescence of hexagonal boron nitride: Effect of surface oxidation under UV-laser irradiation. *Journal of Luminescence*, **127** (2), 595 – 600, 2007.
- [107] L. Museur, E. Feldbach, und A. Kanaev. Defect-related photoluminescence of hexagonal boron nitride. *Phys. Rev. B*, **78**, 155204, 2008.
- [108] C. R. Dean, A. F. Young, I. Meric, C. Lee, L. Wang, S. Sorgenfrei, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Kim, K. L. Shepard, und J. Hone. Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics. *Nature Nanotechnology*, **5**, 722, 2010.
- [109] Z. Liu, L. Song, S. Zhao, J. Huang, L. Ma, J. Zhang, J. Lou, und P. M. Ajayan. Direct Growth of Graphene/Hexagonal Boron Nitride Stacked Layers. *Nano Lett.*, **11** (5), 2032–2037, 2011.
- [110] J. M. Garcia, U. Wurstbauer, A. Levy, L. N. Pfeiffer, A. Pinczuk, A. S. Plaut, L. Wang, C. R. Dean, R. Buizza, A. M. V. D. Zande, J. Hone, K. Watanabe, und T. Taniguchi. Graphene growth on h-BN by molecular beam epitaxy. *Solid State Communications*, **152** (12), 975 – 978, 2012.
- [111] A. A. Balandin. Thermal properties of graphene and nanostructured carbon materials. *Nature Materials*, **10**, 569, 2011.
- [112] O. Minoru und S. Takayoshi. Two-Dimensional Dielectric Nanosheets: Novel Nanoelectronics From Nanocrystal Building Blocks. *Advanced Materials*, **24** (2), 210–228.
- [113] H. Wang, T. Taychatanapat, A. Hsu, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Jarillo-Herrero, und T. Palacios. BN/Graphene/BN Transistors for RF Applications. *IEEE Electron Device Letters*, **32** (9), 1209–1211, 2011.
- [114] J. Bao, K. Jeppson, M. Edwards, Y. Fu, L. Ye, X. Lu, und J. Liu. Synthesis and applications of two-dimensional hexagonal boron nitride in electronics manufacturing. *Electronic Materials Letters*, **12** (1), 1–16, 2016.
- [115] F. Hui, C. Pan, Y. Shi, Y. Ji, E. Grustan-Gutierrez, und M. Lanza. On the use of two dimensional hexagonal boron nitride as dielectric. *Microelectronic Engineering*, **163**, 119 – 133, 2016.
- [116] J. Wang, F. Ma, und M. Sun. Graphene, hexagonal boron nitride, and their heterostructures: properties and applications. *RSC Adv.*, **7**, 16801–16822, 2017.
- [117] Y. Kubota, K. Watanabe, O. Tsuda, und T. Taniguchi. Deep Ultraviolet Light-Emitting Hexagonal Boron Nitride Synthesized at Atmospheric Pressure. *Science*, **317** (5840), 932–934, 2007.

- [118] K. Watanabe, T. Taniguchi, T. Niiyama, K. Miya, und M. Taniguchi. Far-ultraviolet plane-emission handheld device based on hexagonal boron nitride. *Nature Photonics*, **3**, 591, 2009.
- [119] W. Kenji und T. Takashi. Hexagonal Boron Nitride as a New Ultraviolet Luminescent Material and Its Application. *International Journal of Applied Ceramic Technology*, **8** (5), 977–989.
- [120] F. Withers, O. Del Pozo-Zamudio, A. Mishchenko, A. P. Rooney, A. Gholinia, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. J. Haigh, A. K. Geim, A. I. Tartakovskii, und K. S. Novoselov. Light-emitting diodes by band-structure engineering in van der Waals heterostructures. *Nature Materials*, **14**, 301, 2015.
- [121] R. Geick, C. H. Perry, und G. Rupprecht. Normal Modes in Hexagonal Boron Nitride. *Phys. Rev.*, **146**, 543–547, 1966.
- [122] S. Reich, A. C. Ferrari, R. Arenal, A. Loiseau, I. Bello, und J. Robertson. Resonant Raman scattering in cubic and hexagonal boron nitride. *Phys. Rev. B*, **71**, 205201, 2005.
- [123] R. J. Nemanich, S. A. Solin, und R. M. Martin. Light scattering study of boron nitride microcrystals. *Phys. Rev. B*, **23**, 6348–6356, 1981.
- [124] J. Serrano, A. Bosak, R. Arenal, M. Krisch, K. Watanabe, T. Taniguchi, H. Kanda, A. Rubio, und L. Wirtz. Vibrational Properties of Hexagonal Boron Nitride: Inelastic X-Ray Scattering and Ab Initio Calculations. *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 095503, 2007.
- [125] R. V. Gorbachev, I. Riaz, R. R. Nair, R. Jalil, L. Britnell, B. D. Belle, E. W. Hill, K. S. Novoselov, K. Watanabe, T. Taniguchi, A. K. Geim, und P. Blake. Hunting for Monolayer Boron Nitride: Optical and Raman Signatures. *Small*, **7** (4), 465–468, 2011.
- [126] Q. Cai, D. Scullion, A. Falin, K. Watanabe, T. Taniguchi, Y. Chen, E. J. G. Santos, und L. H. Li. Raman signature and phonon dispersion of atomically thin boron nitride. *Nanoscale*, **9**, 3059–3067, 2017.
- [127] R. Arenal, A. C. Ferrari, S. Reich, L. Wirtz, J.-Y. Mevellec, S. Lefrant, A. Rubio, und A. Loiseau. Raman Spectroscopy of Single-Wall Boron Nitride Nanotubes. *Nano Letters*, **6** (8), 1812–1816, 2006. PMID: 16895378.
- [128] R. Bourrellier, S. Meuret, A. Tararan, O. Stéphan, M. Kociak, L. H. G. Tizei, und A. Zobelli. Bright UV Single Photon Emission at Point Defects in h-BN. *Nano Letters*, **16** (7), 4317–4321, 2016. PMID: 27299915.
- [129] J. Wolters, N. Sadzak, A. W. Schell, T. Schröder, und O. Benson. Measurement of the Ultrafast Spectral Diffusion of the Optical Transition of Nitrogen Vacancy

- Centers in Nano-Size Diamond Using Correlation Interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 027401, 2013.
- [130] P. Tamarat, T. Gaebel, J. R. Rabeau, M. Khan, A. D. Greentree, H. Wilson, L. C. L. Hollenberg, S. Prawer, P. Hemmer, F. Jelezko, und J. Wrachtrup. Stark Shift Control of Single Optical Centers in Diamond. *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 083002, 2006.
- [131] L. C. Bassett, F. J. Heremans, C. G. Yale, B. B. Buckley, und D. D. Awschalom. Electrical Tuning of Single Nitrogen-Vacancy Center Optical Transitions Enhanced by Photoinduced Fields. *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 266403, 2011.
- [132] B. Sontheimer, M. Braun, N. Nikolay, N. Sadzak, I. Aharonovich, und O. Benson. Photodynamics of quantum emitters in hexagonal boron nitride revealed by low-temperature spectroscopy. *Phys. Rev. B*, **96**, 121202, 2017.
- [133] E. Neu, F. Guldner, C. Arend, Y. Liang, S. Ghodbane, H. Sternschulte, D. Steinmüller-Nethl, A. Krueger, und C. Becher. Low temperature investigations and surface treatments of colloidal narrowband fluorescent nanodiamonds. *Journal of Applied Physics*, **113** (20), 203507, 2013.
- [134] K. D. Jahnke, A. Sipahigil, J. M. Binder, M. W. Doherty, M. Metsch, L. J. Rogers, N. B. Manson, M. D. Lukin, und F. Jelezko. Electron-phonon processes of the silicon-vacancy centre in diamond. *New Journal of Physics*, **17** (4), 043011, 2015.
- [135] G. Noh, D. Choi, J.-H. Kim, D.-G. Im, Y.-H. Kim, H. Seo, und J. Lee. Stark Tuning of Single-Photon Emitters in Hexagonal Boron Nitride. *Nano Lett.*, 2018.
- [136] W. Denk, J. Strickler, und W. Webb. Two-photon laser scanning fluorescence microscopy. *Science*, **248** (4951), 73–76, 1990.
- [137] A. Zunger und A. Katzir. Point defects in hexagonal boron nitride. II. Theoretical studies. *Phys. Rev. B*, **11**, 2378–2390, 1975.
- [138] I. Jiménez, A. Jankowski, L. J. Terminello, J. A. Carlisle, D. G. J. Sutherland, G. L. Doll, J. V. Mantese, W. M. Tong, D. K. Shuh, und F. J. Himpsel. Near-edge x-ray absorption fine structure study of bonding modifications in BN thin films by ion implantation. *Applied Physics Letters*, **68** (20), 2816–2818, 1996.
- [139] W. Orellana und H. Chacham. Stability of native defects in hexagonal and cubic boron nitride. *Phys. Rev. B*, **63**, 125205, 2001.
- [140] S. Azevedo, J. R. Kaschny, C. M. C. de Castilho, und F. de Brito Mota. A theoretical investigation of defects in a boron nitride monolayer. *Nanotechnology*, **18** (49), 495707, 2007.

- [141] C. Jin, F. Lin, K. Suenaga, und S. Iijima. Fabrication of a Freestanding Boron Nitride Single Layer and Its Defect Assignments. *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 195505, 2009.
- [142] A. Zobelli, A. Gloter, C. P. Ewels, G. Seifert, und C. Colliex. Electron knock-on cross section of carbon and boron nitride nanotubes. *Phys. Rev. B*, **75**, 245402, 2007.
- [143] O. Lehtinen, E. Dumur, J. Kotakoski, A. Krasheninnikov, K. Nordlund, und J. Keinonen. Production of defects in hexagonal boron nitride monolayer under ion irradiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **269** (11), 1327 – 1331, 2011. INELASTIC ION-SURFACE COLLISIONS.
- [144] C. Attaccalite, M. Bockstedte, A. Marini, A. Rubio, und L. Wirtz. Coupling of excitons and defect states in boron-nitride nanostructures. *Phys. Rev. B*, **83**, 144115, 2011.
- [145] M. Kianinia, B. Regan, S. A. Tawfik, T. T. Tran, M. J. Ford, I. Aharonovich, und M. Toth. Robust Solid-State Quantum System Operating at 800 K. *ACS Photonics*, **4** (4), 768–773, 2017.
- [146] G. Davies. The Jahn-Teller effect and vibronic coupling at deep levels in diamond. *Reports on Progress in Physics*, **44** (7), 787, 1981.
- [147] A. Moore und L. Singer. Electron spin resonance in carbon-doped boron nitride. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, **33** (2), 343 – 356, 1972.
- [148] T. Taniguchi und K. Watanabe. Synthesis of high-purity boron nitride single crystals under high pressure by using Ba–BN solvent. *Journal of Crystal Growth*, **303** (2), 525 – 529, 2007.
- [149] T. Saleh. *Fundamentals of Photonics*. Wiley Series in Pure and Applied Optics, 1991.
- [150] C. J. Hood, H. J. Kimble, und J. Ye. Characterization of high-finesse mirrors: Loss, phase shifts, and mode structure in an optical cavity. *Phys. Rev. A*, **64**, 033804, 2001.
- [151] R. Albrecht. Copling of a Single Nitrogen-Vacancy Center in Diamond to a Fiber-Based Microcavity. *PhD-Thesis*, 2014.
- [152] D. Hunger, T. Steinmetz, Y. Colombe, C. Deutsch, T. W. Hänsch, und J. Reichel. A fiber Fabry Perot cavity with high finesse. *New J. Phys.*, **12** (6), 065038, 2010.
- [153] M. Fox. *Quantum Optics - An Introduction*. Oxford University Press, 1st Edition, 2006.

- [154] A. Auffèves, B. Besga, J.-M. Gérard, und J.-P. Poizat. Spontaneous emission spectrum of a two-level atom in a very-high- Q cavity. *Phys. Rev. A*, **77**, 063833, 2008.
- [155] A. Bommer. *Aufbau eines fasergekoppelten Mikroresonators zur Kopplung von Farbzentren in Diamant bei kryogenen Temperaturen*. Diplomarbeit, Universität des Saarlandes, 2013.
- [156] H. Kaupp, T. Hümmer, M. Mader, B. Schlederer, J. Benedikter, P. Haeusser, H.-C. Chang, H. Fedder, T. W. Hänsch, und D. Hunger. Purcell-Enhanced Single-Photon Emission from Nitrogen-Vacancy Centers Coupled to a Tunable Microcavity. *Phys. Rev. Applied*, **6**, 054010, 2016.
- [157] E. Neu, M. Fischer, S. Gsell, M. Schreck, und C. Becher. Fluorescence and polarization spectroscopy of single silicon vacancy centers in heteroepitaxial nanodiamonds on iridium. *Phys. Rev. B*, **84**, 205211, 2011.
- [158] E. Neu. *Silicon vacancy color centers in chemical vapor deposition diamond: New insights into promising solid state single photon sources*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2012.
- [159] E. Neu, M. Agio, und C. Becher. Photophysics of single silicon vacancy centers in diamond: implications for single photon emission. *Opt. Express*, **20** (18), 19956–19971, 2012.
- [160] T. Schröder, S. L. Mouradian, J. Zheng, M. E. Trusheim, M. Walsh, E. H. Chen, L. Li, I. Bayn, und D. Englund. Quantum nanophotonics in diamond. *J. Opt. Soc. Am. B*, **33** (4), B65–B83, 2016.
- [161] M. Trupke, E. A. Hinds, S. Eriksson, E. A. Curtis, Z. Moktadir, E. Kukharenska, und M. Kraft. Microfabricated high-finesse optical cavity with open access and small volume. *Appl. Phys. Lett*, **87** (21), 211106, 2005.
- [162] P. R. Dolan, G. M. Hughes, F. Grazioso, B. R. Patton, und J. M. Smith. Femtoliter tunable optical cavity arrays. *Opt. Lett.*, **35** (21), 3556–3558, 2010.
- [163] A. A. P. Trichet, P. R. Dolan, D. M. Coles, G. M. Hughes, und J. M. Smith. Topographic control of open-access microcavities at the nanometer scale. *Opt. Express*, **23** (13), 17205–17216, 2015.
- [164] D. Hunger, C. Deutsch, R. J. Barbour, R. J. Warburton, und J. Reichel. Laser micro-fabrication of concave, low-roughness features in silica. *AIP Advances*, **2** (1), 012119, 2012.
- [165] C. Deutsch. *High finesse fibre Fabry-Perot resonators*. Diplomarbeit, Ludwig-Maximilians Universität München, 2008.

- [166] A. W. Schell, G. Kewes, T. Schröder, J. Wolters, T. Aichele, und O. Benson. A scanning probe-based pick-and-place procedure for assembly of integrated quantum optical hybrid devices. *Review of Scientific Instruments*, **82** (7), 073709, 2011.
- [167] E. Janitz, M. Ruf, M. Dimock, A. Bourassa, J. Sankey, und L. Childress. Fabry-Perot microcavity for diamond-based photonics. *Phys. Rev. A*, **92**, 043844, 2015.
- [168] S. Bogdanovic, S. B. van Dam, C. Bonato, L. C. Coenen, A.-M. J. Zwerver, B. Hensen, M. S. Z. Liddy, T. Fink, A. Reiserer, M. Loncar, und R. Hanson. Design and low-temperature characterization of a tunable microcavity for diamond-based quantum networks. *Applied Physics Letters*, **110** (17), 171103, 2017.
- [169] S. D. Barrett und P. Kok. Efficient high-fidelity quantum computation using matter qubits and linear optics. *Phys. Rev. A*, **71**, 060310, 2005.
- [170] A. A. P. Trichet, P. R. Dolan, D. James, G. M. Hughes, C. Vallance, und J. M. Smith. Nanoparticle Trapping and Characterization Using Open Microcavities. *Nano Letters*, **16** (10), 6172–6177, 2016. PMID: 27652604.
- [171] A. Muller, E. B. Flagg, M. Metcalfe, J. Lawall, und G. S. Solomon. Coupling an epitaxial quantum dot to a fiber-based external-mirror microcavity. *Applied Physics Letters*, **95** (17), 173101, 2009.
- [172] T. Herzog, M. Sartison, S. Kolatschek, S. Hepp, A. Bommer, C. Pauly, F. Mücklich, C. Becher, M. Jetter, S. L. Portalupi, und P. Michler. Pure single-photon emission from In(Ga)As QDs in a tunable fiber-based external mirror microcavity. *Quantum Science and Technology*, **3** (3), 034009, 2018.
- [173] H. Snijders, J. A. Frey, J. Norman, V. P. Post, A. C. Gossard, J. E. Bowers, M. P. van Exter, W. Löffler, und D. Bouwmeester. Fiber-Coupled Cavity-QED Source of Identical Single Photons. *Phys. Rev. Applied*, **9**, 031002, 2018.
- [174] D. Steinmetz. *Ni/Si-basierte Farbzentren in Diamant als Einzelphotonenquellen*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2011.
- [175] J. Riedrich-Möller. *Deterministic coupling of single color centers to monolithic photonic crystal cavities in single crystal diamond*. Dissertation, Universität des Saarlandes, 2014.
- [176] G. Grosso, H. Moon, B. Lienhard, S. Ali, D. K. Efetov, M. M. Furchi, P. Jarillo-Herrero, M. J. Ford, I. Aharonovich, und D. Englund. Tunable and high-purity room temperature single-photon emission from atomic defects in hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, **8** (1), 705, 2017.
- [177] A. Dietrich, M. Bürk, E. S. Steiger, L. Antoniuk, T. T. Tran, M. Nguyen, I. Aharonovich, F. Jelezko, und A. Kubanek. Observation of Fourier transform limited lines in hexagonal boron nitride. *Phys. Rev. B*, **98**, 081414, 2018.

- [178] S. Lindner, A. Bommer, A. Muzha, A. Krueger, L. Gines, S. Mandal, O. Williams, E. Londero, A. Gali, und C. Becher. Strongly inhomogeneous distribution of spectral properties of silicon-vacancy color centers in nanodiamonds. *arXiv:1807.03842*, 2018.
- [179] X. Z. Du, M. R. Uddin, J. Li, J. Y. Lin, und H. X. Jiang. Layer number dependent optical properties of multilayer hexagonal BN epilayers. *Applied Physics Letters*, **110** (9), 092102, 2017.
- [180] G. Kern, G. Kresse, und J. Hafner. Ab initio calculation of the lattice dynamics and phase diagram of boron nitride. *Phys. Rev. B*, **59**, 8551–8559, 1999.
- [181] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, und U. P. Wild. Nonclassical Photon Statistics in Single-Molecule Fluorescence at Room Temperature. *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 1148–1151, 2000.
- [182] R. M. Dickson, A. B. Cubitt, R. Y. Tsien, und W. E. Moerner. On/off blinking and switching behaviour of single molecules of green fluorescent protein. *Nature*, **388**, 355, 1997.
- [183] C. Bradac, T. Gaebel, N. Naidoo, M. J. Sellars, J. Twamley, L. J. Brown, A. S. Barnard, T. Plakhotnik, A. V. Zvyagin, und J. R. Rabeau. Observation and control of blinking nitrogen-vacancy centres in discrete nanodiamonds. *Nature Nanotechnology*, **5**, 345, 2010.
- [184] P. Siyushev, V. Jacques, I. Aharonovich, F. Kaiser, T. Müller, L. Lombez, M. Atatüre, S. Castelletto, S. Prawer, F. Jelezko, und J. Wrachtrup. Low-temperature optical characterization of a near-infrared single-photon emitter in nanodiamonds. *New Journal of Physics*, **11** (11), 113029, 2009.
- [185] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, und L. E. Brus. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals. *Nature*, **383**, 802, 1996.
- [186] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, E. Waks, und Y. Yamamoto. Submicrosecond correlations in photoluminescence from InAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, **69**, 205324, 2004.
- [187] J. H. Weber, J. Kettler, H. Vural, M. Müller, J. Maisch, M. Jetter, S. L. Portalupi, und P. Michler. Overcoming correlation fluctuations in two-photon interference experiments with differently bright and independently blinking remote quantum emitters. *Phys. Rev. B*, **97**, 195414, 2018.
- [188] S. Choi, B. C. Johnson, S. Castelletto, C. Ton-That, M. R. Phillips, und I. Aharonovich. Single photon emission from ZnO nanoparticles. *Applied Physics Letters*, **104** (26), 261101, 2014.

- [189] A. J. Morfa, B. C. Gibson, M. Karg, T. J. Karle, A. D. Greentree, P. Mulvaney, und S. Tomljenovic-Hanic. Single-Photon Emission and Quantum Characterization of Zinc Oxide Defects. *Nano Lett.*, **12** (2), 949–954, 2012.
- [190] S. Castelletto, B. C. Johnson, V. Ivády, N. Stavrias, T. Umeda, A. Gali, und T. Ohshima. A silicon carbide room-temperature single-photon source. *Nature Materials*, **13**, 151, 2013.
- [191] T. T. Tran, M. Kianinia, M. Nguyen, S. Kim, Z.-Q. Xu, A. Kubanek, M. Toth, und I. Aharonovich. Resonant Excitation of Quantum Emitters in Hexagonal Boron Nitride. *ACS Photonics*, **5** (2), 295–300, 2018.
- [192] A. Scherrmann. *Erzeugung und Untersuchung von Quantenemittern in Multi-Lagen Flakes aus hexagonalem Bornitrid*. Diplomarbeit, Universität des Saarlandes, 2017.
- [193] J. O. Orwa, C. Santori, K. M. C. Fu, B. Gibson, D. Simpson, I. Aharonovich, A. Stacey, A. Cimmino, P. Balog, M. Markham, D. Twitchen, A. D. Greentree, R. G. Beausoleil, und S. Prawer. Engineering of nitrogen-vacancy color centers in high purity diamond by ion implantation and annealing. *Journal of Applied Physics*, **109** (8), 083530, 2011.
- [194] J. Botsoa, T. Sauvage, M.-P. Adam, P. Desgardin, E. Leoni, B. Courtois, F. Treussart, und M.-F. Barthe. Optimal conditions for NV^- center formation in type-1b diamond studied using photoluminescence and positron annihilation spectroscopies. *Phys. Rev. B*, **84**, 125209, 2011.
- [195] Z.-Q. Xu, C. Elbadawi, T. T. Tran, M. Kianinia, X. Li, D. Liu, T. B. Hoffman, M. Nguyen, S. Kim, J. H. Edgar, X. Wu, L. Song, S. Ali, M. Ford, M. Toth, und I. Aharonovich. Single photon emission from plasma treated 2D hexagonal boron nitride. *Nanoscale*, **10**, 7957–7965, 2018.
- [196] H. Ngoc My Duong, M. A. P. Nguyen, M. Kianinia, T. Ohshima, H. Abe, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. H. Edgar, I. Aharonovich, und M. Toth. Effects of High-Energy Electron Irradiation on Quantum Emitters in Hexagonal Boron Nitride. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **10** (29), 24886–24891, 2018.
- [197] A. Zobelli, C. P. Ewels, A. Gloter, und G. Seifert. Vacancy migration in hexagonal boron nitride. *Phys. Rev. B*, **75**, 094104, 2007.
- [198] H. Pinto, R. Jones, D. Palmer, J. Goss, P. Briddon, und S. Öberg. Theory of the surface effects on the luminescence of the NV-defect in nanodiamond. *physica status solidi (a)*, **208** (9), 2045–2050, 2011.
- [199] W. Hu, Z. Li, und J. Yang. Surface and size effects on the charge state of NV center in nanodiamonds. *Computational and Theoretical Chemistry*, **1021**, 49 – 53, 2013. Clusters: From Dimers to Nanoparticles.

- [200] A. N. Newell, D. A. Dowdell, und D. H. Santamore. Surface effects on nitrogen vacancy centers neutralization in diamond. *Journal of Applied Physics*, **120** (18), 185104, 2016.
- [201] C. Palacios-Berraquero, D. M. Kara, A. R.-P. Montblanch, M. Barbone, P. Latawiec, D. Yoon, A. K. Ott, M. Loncar, A. C. Ferrari, und M. Atatüre. Large-scale quantum-emitter arrays in atomically thin semiconductors. *Nature Communications*, **8**, 15093, 2017.
- [202] S. Kumar, A. Kaczmarczyk, und B. D. Gerardot. Strain-Induced Spatial and Spectral Isolation of Quantum Emitters in Mono- and Bilayer WSe₂. *Nano Letters*, **15** (11), 7567–7573, 2015.
- [203] L. N. Tripathi, O. Iff, S. Betzold, u. Dusanowski, M. Emmerling, K. Moon, Y. J. Lee, S.-H. Kwon, S. Höfling, und C. Schneider. Spontaneous Emission Enhancement in Strain-Induced WSe₂ Monolayer-Based Quantum Light Sources on Metallic Surfaces. *ACS Photonics*, **5** (5), 1919–1926, 2018.
- [204] N. V. Proscia, Z. Shoton, H. Jayakumar, P. Reddy, M. Dollar, M. Doherty, A. Alkauskas, C. A. Meriles, und V. M. Menon. Formation of quantum emitter arrays in hexagonal Boron Nitride at room temperature. In *Conference on Lasers and Electro-Optics*, S. FTu4H.1. Optical Society of America, 2018.
- [205] T. Schröder, A. W. Schell, G. Kewes, T. Aichele, und O. Benson. Fiber-Integrated Diamond-Based Single Photon Source. *Nano Lett.*, **11** (1), 198–202, 2011.
- [206] M. Schmidt. *Aufbau und Test eines faserbasierten Mikroresonators für die Kopplung von Farbzentren bei kryogenen Temperaturen*. Diplomarbeit, Universität des Saarlandes, 2016.
- [207] A. Klenke. *Wahrscheinlichkeitstheorie*. Springer Berlin Heidelberg, 2008.

Danksagung

Diese Arbeit wäre ohne die fortwährende Unterstützung von Freunden, Familie und Kollegen nicht möglich gewesen. An dieser Stelle sollen die Menschen erwähnt werden, die direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Gruppe anfertigen zu können, danke ich zunächst meinem Doktorvater Prof. Dr. Christoph Becher. In all der Zeit konnte ich nicht nur einen tiefen Einblick in die Welt der modernen Physik und des Forschungsalltags werfen, sondern insbesondere auch viel über mich selbst lernen. Im Nachhinein waren es insbesondere die Situationen, in denen nicht alles nach Plan gelaufen ist, die zu meiner persönlichen Weiterentwicklung beigetragen haben. Egal ob Experimente nicht die gewünschten Resultate lieferten, LabView Programme sich verselbstständigten oder Probenkammern schlichtweg nicht vakuumdicht bleiben wollten...; Durch die mir gegebene Freiheit, konsequent an diesen Herausforderungen arbeiten zu können und zu gegebenen Zeiten auch alternative Wege beschreiten zu können, waren mit der nötigen Ruhe letztlich fast alle unmöglich scheinenden Probleme doch irgendwie lösbar. Eine Lektion, die fürs Leben bleibt. Danke!

Ohne Zweitgutachten geht es nicht: Daher ebenso ein herzliches Dankeschön an Prof. Dr. Roland Benewitz, der sich bereit erklärt hat, diese Aufgabe zu übernehmen!

Ein riesengroßes Dankeschön natürlich an alle aktuellen und auch ehemaligen Mitglieder der Arbeitsgruppe. Besonders an Dr. Roland Albrecht, der mich durch seine Betreuung in vorangegangenen Abschlussarbeiten in die Arbeitsgruppe eingegliedert hat. Ebenso ein Salut an Dr. Christian Hepp, der mir vor allem zu Beginn der Arbeit half, Fuß zu fassen und auch in schwierigen Situationen stets erreichbar ist. Ich danke Dr. Elke Neu, dass sie nicht nur stets ein offenes Ohr für viele, viele Fragen hatte sondern stets hilfreich zur Seite stand. Danke natürlich auch an alle euch Aktuellen: Benjamin für viele produktive Pausengespräche über (von Zeit zu Zeit auch mal) nicht ganz so produktive Sachverhalte und das geduldige Korrekturlesen der Arbeit. Danke an Johannes und Matthias, deren Optimismus schier grenzenlos ist und vielleicht doch von Zeit zu Zeit ansteckend war! Danke Dennis und Johannes für die gute Stimmung im Büro (auch und vor allem) in der Endphase der Arbeit und das Korrekturlesen. Carsten und Philipp („*Das is wie bei de Simpsons*“) danke ich vor allem für ihren Einsatz in

IT-Fragen, die oft viel zu wenig gewürdigt werden! Danke Thomas, für das Korrekturlesen der Arbeit. Danke Robert(treboR) für den Unterricht in *Choraler Kommunikation*. Pass die nächsten Jahre auf meinen Schreibtisch auf!

Unterstützung während der Anfertigung der Arbeit erhielt ich darüber hinaus von zwei Bacheloranden (Robert Falkowski, Alexander Scherrmann) und einem Masteranden (Marcel Schmidt), die mich an vielen Etappen sowohl während der Konstruktion der Aufbauten sowie der Durchführung der Experimente unterstützt haben. Insbesondere Marcel danke ich für die große Unterstützung im Zuge der Inbetriebnahme des Kryostaten. Ich wünsche euch Dreien viel Erfolg und vor allem Gesundheit für die Zukunft. Und Marcel: Pass auf deine Knochen auf!

Nun zur guten Seele der AG: Danke Elke Huschens für die immer und zu jeder Zeit vollständig unkomplizierte Abarbeitung organisatorischer Fragen. Egal um was es sich handelte, Elke wusste nicht nur Rat, sondern konnte stets auch spontan weiterhelfen! Auch für dich alles erdenklich Gute für die Zukunft und den baldigen, verdienten Ruhestand!

Während der Arbeit hatte ich die Möglichkeit mit vielen Kooperationspartnern zu interagieren. Zunächst möchte ich mich hier ausdrücklich bei Dr. Christoph Pauly bedanken, der am FIB mit Engelsgeduld über mehrere Monate hinweg Mikrostrukturen in Facetten optischer Glasfasern geschrieben hat. Danke! Ein Dank an die Herren Dr. Marcus Koch und Dipl.Ing. Jörg Schmauch für die Unterstützung am Elektronenmikroskop.

The first three years of my Phd we were part of the european project „WASPS“ (*Wavelength tunable advanced single photon sources*) in which we collaborated with the groups of Jason Smith (Oxford), Oliver Williams (Cardiff), John Rarity (Bristol), David Hunger (Munich) and Alexia Auffeves (Grenoble). I want to thank them and all their co-workers for their collaboration and for giving me the opportunity to visit their institutes during the project!

Furthermore I want to thank the groups of Dirk Englund (Massachusetts Institute of Technology) and Lee Basset (Quantum Engineering Laboratory - Philadelphia) for providing hBN-Monolayer samples!

Weiterhin geht mein Dank Richtung Elektronikwerkstatt zu Stefan Löw und seinem schier endlosen Vorrat größerer und kleinerer elektronischer Bauteile. Ob es um die Reparatur von Powermetern oder den Bau neuer Netzteile ging. Stets wurden die Anfragen innerhalb kürzester Zeit bearbeitet. Vielen Dank!

Während der gesamten Dauer der Arbeit wurden die Versuchsaufbauten stets weiterentwickelt und optimiert. Insbesondere umfasst dies die Integration hochpräzise ange-

fertigter Bauteile, die stets von den fähigen Händen der Männer der Metallwerkstatt geschmiedet wurden. Ich ziehe meinen Hut vor jedem Einzelnen von ihnen und bedanke mich für die stets sehr schnelle und präzise Umsetzung aller in Auftrag gegebenen technischen Zeichnungen. Auch in spontanen und eiligen Angelegenheiten waren sie stets zur Stelle. Danke an das gesamte Team: Michael, Titan, Gereon, Peter, Jürgen, Armin + Rolf!

Unterstützung während der Anfertigung dieser Arbeit erhielt ich nicht nur von allen bisher im universitären Umfeld genannten Personen. Freunde und Familie waren es, die für den nötigen Ausgleich von Faserresonatoren, Kryostaten, Diamanten und hexagonalem Bornitrid gesorgt haben. Ein riesengroßes Dankeschön zunächst nach Tübingen zu Dr. Katharina Rojan. Vielen Dank für deine anhaltende seelische und moralische Unterstützung in allen Lebenslagen. Bleib so wie du bist!

Ein riesiges Dankeschön an die gesamte Thaler-Fraktion und den Thaler-Wagen. Ich hoffe es werden noch viele Wanderungen in angenehmen Wandergeschwindigkeiten folgen. Klaus, Matze, Philipp, Josz, Buddha und Carlo danke ich insbesondere für viele gemütliche Schwenk-, Skat- und Steakabende.

Ich danke des Weiteren den Herren Dr. Günther Sitzen und Dr. Tim Liegen für bahnbrechende Entdeckungen im Bereich der Entspannungstechniken!

Dies bringt mich in meine Heimat, das schöne Bohnental. Ein riesiges Dankeschön an die „Freiwillige Feuerwehr Lindscheid“, den „Tischtennisclub Lindscheid“, den „SV Blau-Weiß Überroth“ und selbstverständlich den „Jugendclub Lindscheid“ und den „FC Durinanner“. Nicht nur während der Anfertigung dieser Arbeit, sondern auch schon zu früheren Zeiten wart ihr alle Rückzugsorte, in denen ich mich zu jeder Zeit wohl gefühlt hab und den zuweilen nötigen Abstand von der Physik finden durfte. Insbesondere Danke an das Grundgerüst des Jugendclubs: Julian, Lukas, Niko, Jochen, Vivien, Ines, Cindy und Sven. Danke an Dominik und Linn für viele so dermaßen unkomplizierte und gemütliche Stunden (Wann ziehen wir endlich zusammen?). Ich würde gerne noch viel mehr Namen nennen, allerdings würde das an dieser Stelle den Rahmen sprengen. Deshalb fühlt sich jetzt noch einmal jeder, der bislang noch nicht erwähnt wurde, einmal kräftig gedrückt.

Zu guter Letzt danke ich meiner gesamten Familie. Meinen Eltern, Großeltern, meinem Bruder, der ganzen Armee von Onkeln, Tanten, Cousins und Cousinen für ihre fortwährende und andauernde Unterstützung in wirklich allen Lebenslagen. Es ist schön zu wissen, dass ich mich zu jeder Zeit bedingungslos auf jeden Einzelnen von Euch verlassen konnte, kann und immer können werde. Diese Arbeit ist für euch!.....und bisschen auch für mich! ;-)